

KfK 5180

Mai 1993

**Experimentelle Bestimmung
des stellaren n, γ -Querschnittes
des kurzlebigen radioaktiven
Isotops ^{147}Pm**

Th. W. Gerstenhöfer
Institut für Kernphysik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

Kernforschungszentrum Karlsruhe
Institut für Kernphysik

KfK 5180

Experimentelle Bestimmung des stellaren
n, γ -Querschnittes des kurzlebigen radioaktiven
Isotops ^{147}Pm

Th. W. Gerstenhöfer

Von der mathematisch-naturwissenschaftlichen Gesamtfakultät
der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg genehmigte
Dissertation

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

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

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1

ISSN 0303-4003

Zusammenfassung

Beginnend mit dem Isotop ^{56}Fe erfolgt die Synthese der weiteren Elemente über den Einfang von Neutronen während der He-Brennphase eines Sternes ('Rote Riesen'). Die fortgesetzte Nukleosynthese wird bei instabilen Isotopen unterbrochen. Liegen deren Zerfallsraten mit $t_{1/2} = 1..10$ Jahre im Bereich der Ereignisraten des überwiegend langsamen Neutroneneinfangs (s-Prozeß), so werden die beiden möglichen Folgeisotope mit vergleichbaren Häufigkeiten gebildet. Das Verzweungsverhältnis zwischen den beiden konkurrierenden Prozessen hängt dabei bei gegebenem n-Einfangquerschnitt vom Neutronenspektrum und der Neutronendichte ab.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde erstmalig der $\sigma_{n,\gamma}$ -Querschnitt des kurzlebigen Isotops ^{147}Pm im Neutronenenergiebereich $E_n = 3..100$ keV gemessen (Reaktion $^{147}\text{Pm}(n,\gamma)^{148}\text{Pm}$). Dabei wurden signifikante Abweichungen von den bisherigen Werten, die auf theoretischen Modellen beruhen, festgestellt.

Der stellare Wirkungsquerschnitt wurde über die Registrierung des instabilen Folgekerns ^{148}Pm bestimmt. Eine weitere Meßmethode zur direkten Beobachtung der n, γ -Reaktion wurde auf Eignung für β -aktive Proben überprüft.

Die experimentellen Voraussetzungen für Messungen dieser Art unterliegen anderen Anforderungen als Standardmessungen an inaktiven Proben. Die einzelnen Komponenten einer geeigneten Meßanordnung wurden eingehend auf Möglichkeiten ihrer Leistungssteigerung untersucht und Ansätze für deren Optimierung ausgearbeitet. Dies betraf sowohl die verwendete Nachweisteknik als auch die Generierung des Maxwell-ähnlichen Neutronenspektrums ($kT = 30$ keV) mit Hilfe eines Protonenstrahls und der $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ -Reaktion. Die RF-Gasentladungsquelle und ionenoptische Elemente des Karlsruher 3,75 MV Van-de-Graaff Beschleunigers wurden im Hinblick auf eine höhere Ionenausbeute überarbeitet. Letztlich waren die umfangreichen strahlenschutztechnischen Aspekte beim Umgang mit dem Probenmaterial zu berücksichtigen, das eine Aktivität von 5 Curie aufwies.

Ergänzend wurde der $\sigma_{n,\gamma}$ -Querschnitt des Promethium-Folgekerns, ^{147}Sm , gemessen, auch um den direkten Vergleich mit anderen Detektortechniken zu ermöglichen.

Measurement of the stellar (n,γ) cross section of the shortlived radioactive isotope ^{147}Pm

Abstract

During helium burning in the red giant phase of stellar evolution, nuclei with $A > 60$ are produced by the slow neutron capture process (s-process). Starting from the iron group isotopes, the synthesis path works along the valley of beta stability by subsequent neutron captures and beta decays. An important feature of the s-process is the occurrence of branchings in this path whenever unstable isotopes with half-lives comparable to the typical neutron capture time scale of about one year are encountered. The analysis of the corresponding abundance patterns can be used to derive estimates for the stellar neutron flux, temperature, and density.

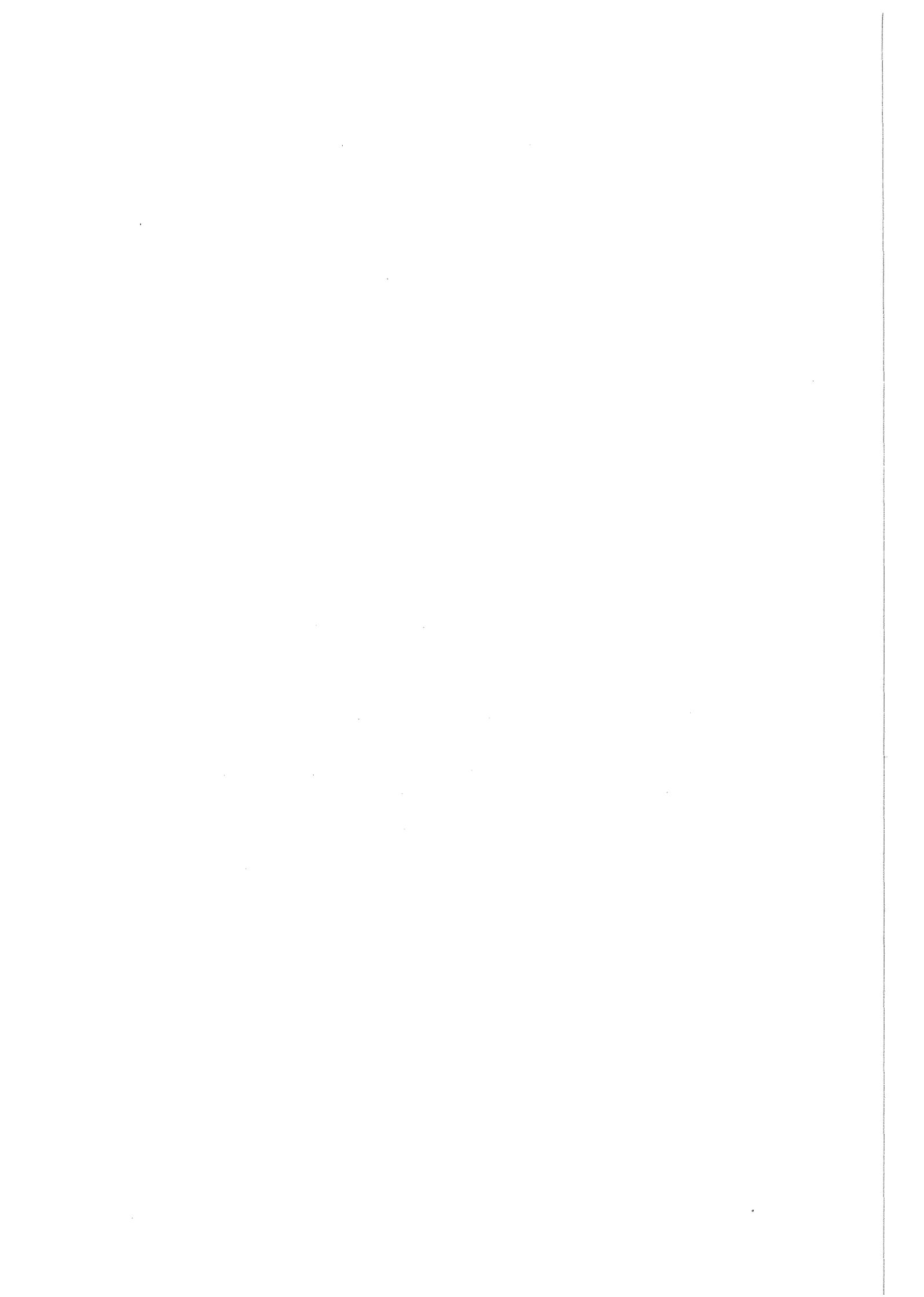
Quantitative branching analyses require reliable (n,γ) cross sections for the branch point nuclei. This report presents the first ever measured (n,γ) cross section for the branch point ^{147}Pm ($t_{1/2} = 2.6$ yr) in the neutron energy range $1 < E_n < 110$ keV. The quantitative part of the experiment was performed with the activation method, but an alternative technique with Moxon-Rae detectors was also successfully tested. The measured cross section differs significantly from the values obtained via statistical model calculations.

The experimental requirements for such investigations on radioactive samples are more stringent than for stable isotopes. Therefore, the experimental setup was optimized with respect to detector techniques, background radiation, and neutron yield. This last aspect was addressed by an attempt to improve the proton beam intensity for the $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ reaction that allows to simulate a quasi-stellar neutron spectrum. To this end, the rf gas discharge ion source and optical components of the Karlsruhe 3.75 Van de Graaff accelerator were revised. Last but not least, the radiation hazard of the ^{147}Pm sample (180 GBq) had to be accounted for.

In addition of the measurements on ^{147}Pm , the stellar (n,γ) cross section on its stable daughter, ^{147}Sm , was also determined, mainly in order to verify the experimental technique with Moxon-Rae detectors.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	3
1.1 Stellare Nukleosynthese	3
1.2 (n, γ)-Meßmethoden	7
1.3 Neutronenquelle - Simulation des stellaren Neutronenflusses	9
1.4 Protonenquelle - der KfK 3.75 MeV Van-de-Graaff	9
Beschleuniger	
2. Ionenquelle	11
2.1 HF-Sender: Grundlagen	11
2.2 Technische Realisation: Selbstabgleichender HF-Sender ..	17
2.3 Extraktion: Grundlagen	19
2.4 Technische Realisation: Taktbare Extraktionsspannung ..	22
2.5 Ergebnisse	24
3. Ionenoptik	33
3.1 Einzellinse	33
3.2 Strahlpulsung	35
4. Erzeugung des stellaren Neutronenspektrums	39
4.1 Lithiumtarget	39
4.2 Das Neutronenspektrum und $\sigma_{n,\gamma}$ -Messungen	39
5. ^{147}Sm, ^{147}Pm: Probenpräparation	41
5.1 Samariumprobe	41
5.2 Radioaktive Promethiumprobe	42
5.3 Sonstige Proben	45
6. $^{147}\text{Sm}(n, \gamma)^{148}\text{Sm}$: Messung der γ-Kaskade	47
6.1 Die Messung	47
6.2 Die Auswertung der Zählraten	48
6.3 Die (n, γ)-Querschnitte	52
6.4 Moxon-Rae Detektor und aktive Probe: ^{147}Pm	54
7. $^{147}\text{Pm}(n, \gamma)^{148}\text{Pm}$: Aktivierungsmessung	55
7.1 Aktivierungs- und Meßaufbau	55
7.2 Nachweiswahrscheinlichkeit	57
7.3 Auswertungsmethode	61
7.4 Ergebnisse	66
8. $\sigma_{n,\gamma}(^{147}\text{Pm})$ und der klassische s-Prozeß	68
Anhang A. Tabelle der $\sigma_{n,\gamma}(E)$-Querschnitte von ^{147}Sm	71
Literaturverzeichnis	72



1. Einleitung

1.1 Stellare Nukleosynthese

Mit der primordialen Nukleosynthese nach dem Urknall beginnt die Entstehung der Elemente: ^4He , D , ^3He und ^7Li sind die ersten stabilen Kerne. Dieser Prozeß wird später in den Sternen durch die Fusion geladener Teilchen fortgesetzt. In den verschiedenen Brennphasen eines Sternes (H-, He-, C- und Si-Brennen) können Elemente bis hin zum Eisen (^{56}Fe) synthetisiert werden. Darüber hinaus verhindert jedoch die zunehmende Coulombbarriere die weitere Anlagerung geladener Nukleonen. Schwere Elemente jenseits des Eisens können somit nur durch Neutroneneinfang und den damit konkurrierenden β -Zerfall gebildet werden. Die Phasen in der Entwicklung eines Sterns, in denen der hierzu notwendige Neutronenfluß auftritt sind:

- He-Brennphase: (α, n) -Reaktionen (s-Prozeß),
- die Explosion von Sternen (Supernovae, r-Prozeß).

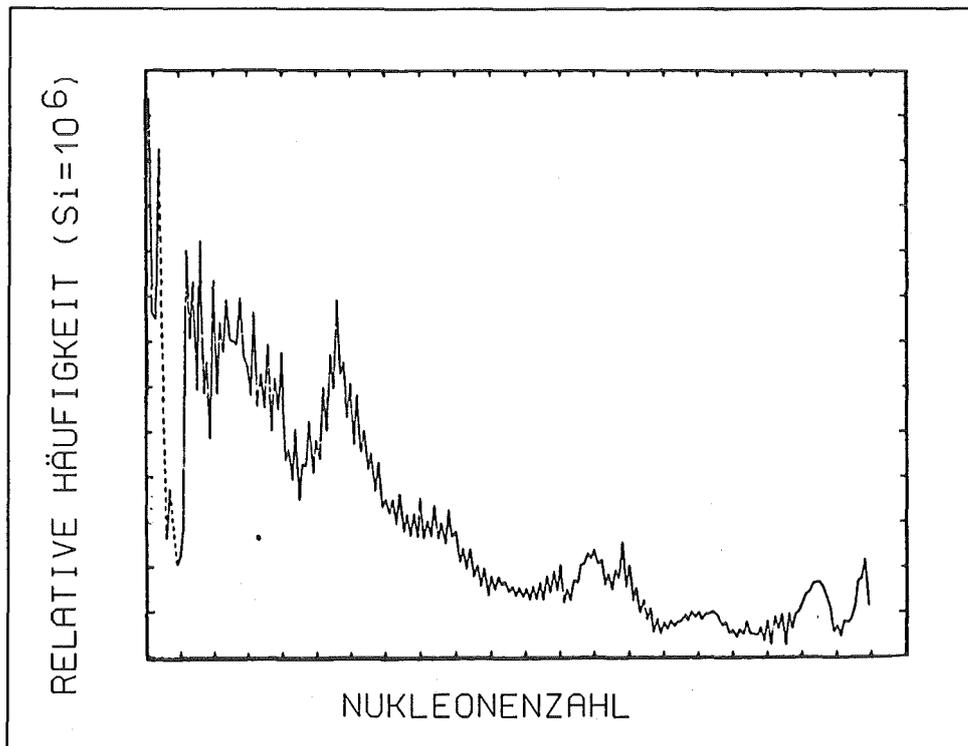


Abb. 1.1: Häufigkeitsverteilung der natürlichen Isotope im Universum. ^{56}Fe mit der höchsten Bindungsenergie dient als Saatkern für die Elementsynthese der schweren Isotope durch Neutroneneinfang.

Die Untersuchung von Meteoriten und die spektroskopische Analyse des Sternenlichtes führt zu einer charakteristischen Häufigkeitsverteilung der Elemente (Abb. 1.1). Modelle verschiedener Prozesse bieten einen Ansatz für die Erklärung ihres Verlaufs:

- s-Prozeß: ein relativ schwacher Neutronenfluß bewirkt Neutroneneinfangzeiten von etwa 1-10 Jahren ($s = \text{slow}$). Bedingt durch die in der Regel kürzeren β -Zerfallszeiten verläuft der Synthesepfad im Stabilitätstal (Abb.1.2).
- r-Prozeß: bei einem Neutronenfluß, der um mehr als 10 Größenordnungen über dem des s-Prozesses liegt, liegen n-Einfangzeiten im Bereich von Mikrosekunden und damit deutlich unter den typischen β -Zerfallszeiten. Der Synthesepfad verläuft abseits des Stabilitätstales. Der r-Prozeß dauert etwa 1 Sekunde ($r = \text{rapid}$) und findet während einer Supernovaexplosion statt.
- p-Prozeß: Photodesintegration und Protoneneinfänge können die vergleichsweise geringe Häufigkeit neutronenarmer Isotope erklären (Beispiel: ^{144}Sm)

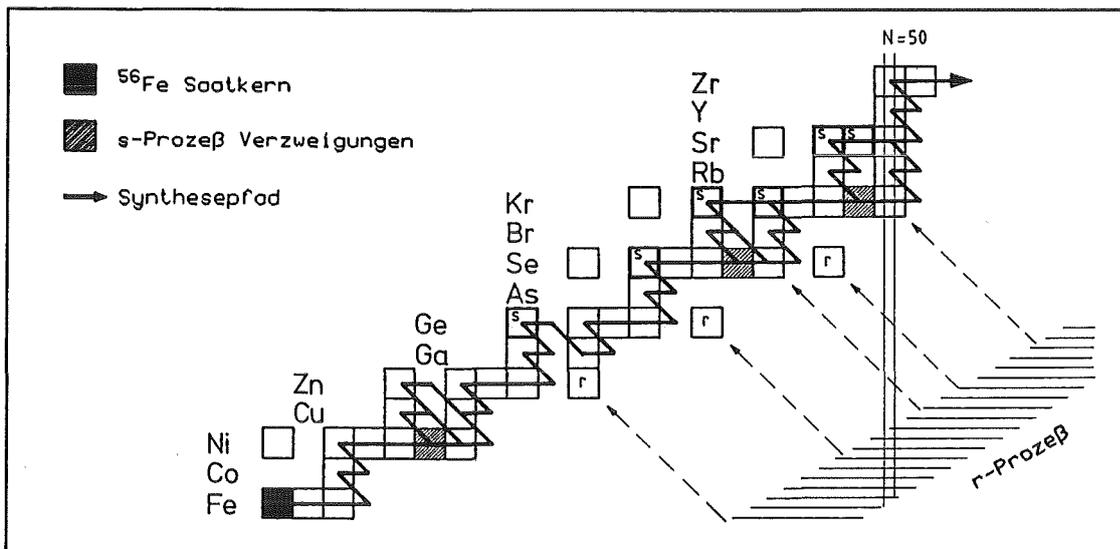


Abb. 1.2: Nukleosynthesepfad im Stabilitätstal (langsamer s-Prozeß, $t_{1/2} \approx 1..10$ a) und im Bereich n-angereicherter Kerne (schneller r-Prozeß, $t_{1/2} \approx 1$ s) durch n-Einfang.

Die Beobachtung von Elementhäufigkeiten und ihre Erklärung durch verschiedene Prozesse unter charakteristischen Umgebungsbedingungen bilden über die Parameter 'Temperatur' und 'Neutronendichte' und deren Dynamik den Berührungspunkt mit Modellen, die die Beschreibung der verschiedenen Brennphasen im Verlauf der Entwicklung eines Sternes zum Ziele haben. Im Rahmen einer klassischen Behandlung des s-Prozesses [Bur57] ergibt sich die Häufigkeit eines Elements durch die Raten seiner Produktion und seiner weiteren Umwandlung. Dabei wird von einem exponentiellen Abfall der Neutronenbestrahlung ausgegangen. Das Energiespektrum

dieser Neutronen entspricht dem eines Maxwell-Boltzmann Spektrums, wobei die thermische Energie von typischerweise $kT = 30$ keV durch die Temperatur beim He-Brennen vorgegeben ist ($T \approx 300 \cdot 10^6 \text{K}$).

$$\Phi_n \sim \sqrt{E_n} \cdot e^{-E_n/kT} \quad (1.1)$$

Ein diesem Spektrum ähnlicher n-Fluß kann im Labor erzeugt werden (Kapitel 4). Ein Neutroneneinfangquerschnitt, $\langle \sigma \rangle$, wird nun so definiert, daß mit

$$\lambda_n = \langle \sigma \rangle n_n v_T, \quad v_T = \sqrt{2kT/\bar{m}} \quad (1.2)$$

eine stellare n-Einfangsrate bei der Neutronendichte n_n formuliert werden kann. Mit der thermischen Geschwindigkeit v_T (\bar{m} ist die reduzierte Masse von Kern und Neutron) und dem energieabhängigen (n, γ) -Querschnitt $\sigma(E_n)$ wird festgelegt [Cla68]

$$\langle \sigma \rangle = \frac{\langle \sigma \cdot v \rangle}{v_T} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{\int_0^\infty \sigma(E_n) \cdot E_n \cdot e^{-E_n/kT} dE_n}{\int_0^\infty E_n \cdot e^{-E_n/kT} dE_n} \quad (1.3)$$

E_n ist hierbei die kinetische Energie der Neutronen im Schwerpunktsystem von Neutron und Kern.

Dieser relativ einfache klassische Ansatz des s-Prozesses wird verfeinert durch dessen Aufspaltung in drei Komponenten [Ibe78]:

- Die Hauptkomponente in Sternen mittlerer Masse ($M = 2..8 M_\odot$), beschreibt die Synthese der Elemente im Bereich $90 < A < 204$ in der Phase des Helium-Schalenbrennens.
- Die schwache Komponente in massiven Sternen ($M > 15 M_\odot$) erzeugt Kerne im Bereich bis $A = 90$ während des Helium-Kernbrennens.
- In Sternen kleiner Masse ($M < M_\odot$) werden die Bleiisotope und Wismut erzeugt.

In jüngerer Zeit zeigte sich, daß eine weitere Verbesserung der Vorhersagen des Modells durch die Annahme gepulster Neutronenflüsse für die Hauptkomponente des s-Prozesses erreicht werden konnte.

Von besonderem Interesse sind instabile Isotope, deren β -Halbwertszeiten in der Größenordnung der n-Einfangsrate liegen. Mit

der β -Zerfallsrate $\lambda_\beta = \ln 2/t_{1/2}$ und der Einfangrate λ_n (1.2) ergibt sich das Verzweungsverhältnis des Synthesepfades

$$f_\beta = \frac{\lambda_\beta}{\lambda_\beta + \lambda_n} \quad (1.4)$$

Dieses Verhältnis wird beeinflusst vom n-Fluß und von der Umgebungstemperatur.

Die Verzweigungen des Synthesepfades bei $A = 147, 148$ und 149 stehen im Mittelpunkt der vorliegenden Arbeit. Der s-Prozeß-Pfad spaltet zunächst beim Neodymisotop ^{147}Nd auf und erfährt bei den Promethiumisotopen eine weitere Diversifikation (punktierte Isotope in Abbildung 1.3). Im Samariumisotop ^{150}Sm führen die verschiedenen Synthesewege wieder zusammen, so daß bei fortgesetztem Neutroneneinfang beginnend bei Neodym unabhängig von dazwischen liegenden β -Zerfällen letztlich ^{150}Sm gebildet wird. Durch die besondere Position der Isotope ^{148}Sm und ^{150}Sm im Hinblick auf den r-Prozeß gewinnt der umrissene Isotopenbereich zusätzlich an Bedeutung: Kerne, die durch den r-Prozeß gebildet wurden, können nicht zur Häufigkeit dieser beiden Sm-Isotopen beitragen, weil die entsprechenden β -Zerfallsketten bei den stabilen Neodymisotopen 148 und 150 enden. ^{148}Sm und ^{150}Sm werden also nur über den s-Prozeß gebildet ('s-only isotopes').

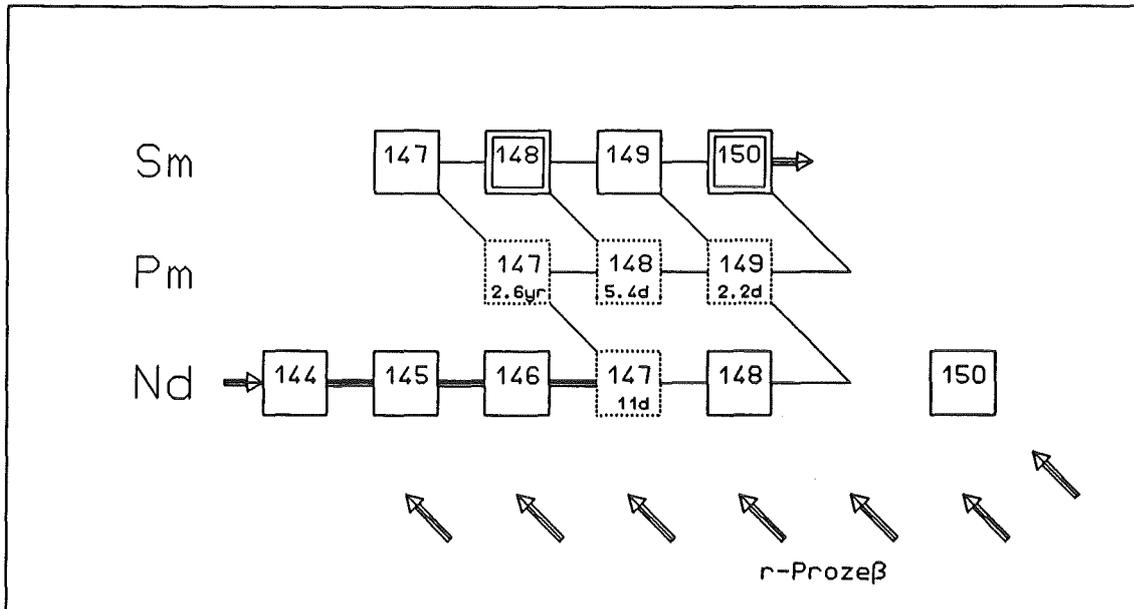


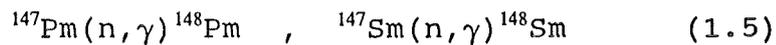
Abb. 1.3: Verzweigungen des Synthesepfades an Isotopen mit ähnlicher Halbwertszeit für den n-Einfang und den β -Zerfall. $^{148,150}\text{Sm}$ entstehen nur über den s-Prozeß.

Über die Messung der (n, γ) -Querschnitte der Samariumisotope und mit der Kenntnis ihrer relativen Häufigkeiten können die Verzweigungen bei $A = 147, 148, 149$ quantitativ untersucht werden. Um aus solchen Analysen auf den n -Fluß schließen zu können, müssen auch die (n, γ) -Querschnitte der instabilen Isotope bekannt sein.

Soll nun eine Apparatur, die bisher nur für stabile Präparate ausgelegt war, auch für die Untersuchung von radioaktiven Isotopen verwendet werden, sind verschiedene Anpassungen notwendig. Mit dem Ziel, den (n, γ) -Einfangquerschnitt von ^{147}Pm zu messen, sollen im Rahmen dieser Arbeit die unterschiedlichen Maßnahmen beschrieben werden, die es ermöglichen, mit wenig Probenmaterial (und damit einer geringen Strahlenbelastung) auszukommen und dennoch günstige Zählraten und einen geringen Untergrund zu erreichen (Kapitel 2, 3, 4 und 5).

1.2 (n, γ) -Meßmethoden

Die Reaktionsrate - und damit der Wirkungsquerschnitt - für den Neutroneneinfang



ist grundsätzlich über zwei verschiedene Wege meßbar:

- Nach dem Neutroneneinfang am Kern (Z, A) befindet sich der Folgekern $(Z, A+1)$ in einem angeregten Zustand. Die Bindungsenergie S_n von einigen MeV wird in einer γ -Kaskade abgegeben (Multiplizität $\langle M \rangle = 3..4$). Je nach Meßmethode werden einzelne oder alle dieser hochenergetischen Photonen in einem Detektor registriert. Zusätzlich kann die Energie des zu einem individuellen Ereignis gehörenden Neutrons durch die Messung seiner Flugzeit vom Ort der Entstehung ('Neutronentarget') bis zur Probe bestimmt werden ('Time-of-flight', TOF). Mit dieser Methode ist die Messung eines energieabhängigen Neutroneneinfangquerschnittes möglich [Käp89].
- Entsteht als Folgekern $(Z, A+1)$ ein instabiles Isotop - im vorliegenden Falle entsteht ^{148}Pm - so kann nach der Bestrahlung des Probenmaterials mit Neutronen die erzeugte Aktivität des Folgekerns bestimmt werden. Je nach Art des Zerfalls dieses Kerns können dabei freiwerdende charakteristische Photonen oder Elektronen bzw. Positronen gezählt werden (γ - oder β -Spektroskopie [Käp89]). Im Falle von ^{147}Pm bietet sich zusätzlich die Möglichkeit, zwischen dem Grundzustand des Tochterkerns ^{148}Pm und dem angeregten Isomer ^{148m}Pm zu unterscheiden. Dieser Meßansatz erlaubt die Messung des integralen n -Einfangquerschnittes über das Neutronenspektrum während der Aktivierung des Mutterkerns.

Für die Messung der γ -Kaskade stehen in Karlsruhe mit einem

Aufbau von Moxon-Rae Detektoren sowie mit einer 4π -BaF₂ Detektoranordnung zwei verschiedene Meßsysteme zur Verfügung.

Im Detektorsystem nach Moxon und Rae [Mox 63] setzen die Photonen der Kaskade in einem Konvertermaterial zunächst Elektronen durch einen (γ, e)-Prozeß frei (Comptonstreuung). Diese erzeugen im anschließenden dünnen Plastiksintillator Licht, das in einem Photomultiplier nachgewiesen wird [Mal75a, Mal75b, Iye74].

Der Karlsruher 4π -Bariumfluorid-Detektor deckt mit seinen 42 Einzelkristallen nahezu den gesamten Raumwinkel ab. In ihm kann also die ganze γ -Kaskade nachgewiesen und so auch ihre Multiplizität bestimmt werden. Im Szintillatormaterial werden die Photonen aus der zu beobachtenden (n, γ)-Reaktion vollständig absorbiert. Das entstehende Szintillationslicht wird von 42 Photomultipliern verarbeitet [Wis90].

Detektor:	4π -BaF ₂	Moxon-Rae
Nachweiswahrscheinlichkeit:	ca. 100%	10^{-3}
Raumwinkelanteil:	4π (100%)	10^{-2} - 10^{-1} (0,1-1%)
Zeitauflösung:	500 ps	1 ns
Neutronenflugweg:	77 cm	2 cm
Einzeldetektoren:	42	3
E _n -Spektrum:	TOF	TOF
E _{γ} -Spektrum:	ja	nein
Energieauflösung:	7% bei 2,5 MeV	-

Tab.1.1: Wesentliche Charakteristika der Karlsruher Detektoren zur Messung der γ -Kaskade aus (n, γ)-Einfangsreaktionen ('Time-of-Flight' Methode).

Für Messungen an radioaktiven Präparaten eignet sich das Moxon-Rae Verfahren. Ein kurzer Flugweg für die Neutronen vom neutronenproduzierenden Target zur Probe erlaubt einen sehr hohen n-Fluß ($10^7 - 10^8 \text{ s}^{-1}$). Wesentlich aber ist, daß bei einer radioaktiven Probe die hohe Nachweiswahrscheinlichkeit des 4π -BaF₂ Detektors ein Nachteil ist (zu hohe Zählrate, Pile-up Effekte, Bremsstrahlungsuntergrund). Bei Moxon-Rae Detektoren hingegen ist $\epsilon \approx 0$ für $E_\gamma < 0,5 \text{ MeV}$, was die Unterdrückung der Eigenstrahlung der Probe erlaubt.

Zur Bestimmung der Anzahl der erzeugten instabilen Tochterkerne im Rahmen einer Aktivierungsmessung bieten sich zwei Instrumente an. Beim Zerfall des Tochterkerns emittierte Photonen können mit einem hochreinen Germaniumdetektor (HPGe) nachgewiesen werden. Läßt sich ein Folgekern nur über emittierte Elektronen registrieren, steht hierfür ein 4π -Meßsystem mit lithiumgedrifteten Siliziumdetektoren (Si(Li)) zur Verfügung. Das bei der Aktivierung von ¹⁴⁷Pm erzeugte Isotop ¹⁴⁸Pm beziehungsweise ^{148m}Pm weist bei seinem Zerfall charakteristische γ -Linien sowohl für den Grundzustand wie auch für das Isomer auf. Für die Messung an diesen Isotopen bietet sich also der HPGe-Detektor an (Kap. 7).

1.3 Neutronenquelle - Simulation des stellaren Neutronenflusses

Ziel der Forschungsarbeiten auf dem Gebiete der stellaren Nucleosynthese ist die Reproduktion der gegenwärtigen Häufigkeitsverteilung der Isotope. Damit verbunden sind Modellansätze zur Beschreibung der stellaren Verhältnisse. Bestandteil experimenteller Methoden zur Messung der n-Einfangsquerschnitte sollte also die Wechselwirkung des Probenmaterials mit solchen Neutronen sein, die eine Energieverteilung aufweisen, wie sie in stellarer Umgebung herrscht. Dieses Maxwell'sche Neutronenspektrum (1.1) generiert man im Labor in guter Nahrung mit Hilfe der Reaktion



Über die Energie der Protonen, mit denen das Lithiumtarget ('Neutronentarget') beschossen wird, läßt sich das Neutronenspektrum variieren. Wählt man die Protonenenergie 30 keV über der Reaktionsschwelle von 1881 keV, so ergibt sich gerade ein Spektrum, das einer thermischen Energie $kT = 30$ keV entspricht. Die Reaktionskinematik bedingt die Emission aller Neutronen in einen Vorwärtskegel von 120° Öffnungswinkel [Bee80, Rat88, Neu91] (Kapitel 4).

Bei Aktivierungsmessungen deckt das Probenmaterial den gesamten Neutronenkegel ab, sodaß die Probe einem quasi-stellaren n-Fluß ausgesetzt ist. Da bei der Messung der γ -Kaskaden mit Moxon-Rae- oder BaF_2 -Detektoren auch die n-Energie gemessen wird (TOF-Methode), kann in diesen Fällen ein differentieller (n,γ) -Querschnitt, $\sigma_{n,\gamma}(E_n)$, gemessen werden. Der stellare Querschnitt ergibt sich dann durch eine nachträgliche Faltung mit dem stellaren Spektrum. Deshalb ist es in Flugzeitmessungen nicht notwendig, daß die Probe den gesamten n-Ke gel abdeckt.

1.4 Protonenquelle - der KfK 3,75 MV Van-de-Graaff Beschleuniger

Die Protonen für die neutronenerzeugende (p,n) -Reaktion (1.6) werden in einer Hochfrequenz-Gasentladungsquelle durch die Ionisation von H_2 -Gas erzeugt [Val77] (Kapitel 2). Die aus dem Wasserstoffplasma extrahierten H^+ -Ionen werden in einer ionenoptischen Kammer auf 10-20 keV vorbeschleunigt (Kapitel 3). An dieser Stelle kann der Protonenstrahl durch Strahlablenkung auch gepulst werden. Damit wird die Messung ihrer Flugzeit beim Nachweis der γ -Kaskade (s. Kap. 6) möglich. Die erreichbare Pulsbreite beträgt an dieser Stelle etwa 10 ns. Diese Installation befindet sich innerhalb des V.d.G.-Beschleunigers auf Hochspannungspotential. Nach Verlassen des Beschleunigers werden die

Protonenpulse durch eine 'Bunching'-Einrichtung auf unter 1 ns zeitlich komprimiert. Dieses Protonenpaket trifft dann auf das neutronenproduzierende Li-Target. Für die Aktivierungsmessungen wird ein kontinuierlicher Protonenstrom verwendet.

Im Hinblick auf die Untersuchung von radioaktiven Isotopen ist im Interesse des Strahlenschutzes (und damit der experimentierenden Physiker) eine geringe Probenmenge anzustreben. Um dennoch verwertbare Zählraten bei den oben geschilderten Experimenten zu erreichen, lautet die einfache Forderung an den Beschleuniger: möglichst viel Protonenstrom. Weiterhin sind zur Flugzeitmessung der Neutronen für den gepulsten Strahl eine hohe Protonenzahl pro Puls und lange Pulsabstände anzustreben (z.B. 100 kHz statt 1 MHz). Letzteres reduziert den Untergrund durch Streuneutronen aus dem vorherigen Puls.

In den folgenden Kapiteln 2, 3 und 4 werden eine Reihe von Maßnahmen und Entwicklungen an einzelnen Beschleunigerkomponenten beschrieben, die die gesamte Anlage ihrem Klassenziel näher bringen können.

2. Ionenquelle

Der erste Ansatzpunkt zur Erhöhung des Protonenstroms liegt bereits in der Erzeugung der Protonen selbst. Die bisherige Installation sieht hierfür eine Hochfrequenz-Gasentladungsquelle vor. In einem Glaszylinder ($V = 100 \text{ cm}^3$) wird H_2 -Gas ionisiert. Dazu dient ein kapazitiv an das Plasma gekoppelter Röhrensender ($f = 130 \text{ MHz}$, $P = 100 \text{ W}$, $p_{\text{H}_2} = 2 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$). Der ionisierte elementare Wasserstoff wird durch das Anlegen einer Extraktionsspannung von einigen keV aus der Quelle in das Beschleunigerstrahlrohr injiziert. Variable Parameter während des Beschleunigerbetriebes sind aus technischen Gründen nur der Gasdruck in der Quelle und die Extraktionsspannung. Zu erwähnen sind die beengten räumlichen Verhältnisse im Hochspannungsterminal des Beschleunigers: für die gesamte Quellenelektronik steht gerade ein Volumen von 25 Litern zur Verfügung.

2.1 HF-Sender: Grundlagen

Die Senderleistung und -frequenz beeinflussen das Zündverhalten eines Plasmas und den eigentlichen kontinuierlichen Ionisationsvorgang des zuströmenden Neutralgases selbst. Weiterhin ist aus sendertechnischer Sicht den im Beschleuniger herrschenden Umgebungsbedingungen Rechnung zu tragen:

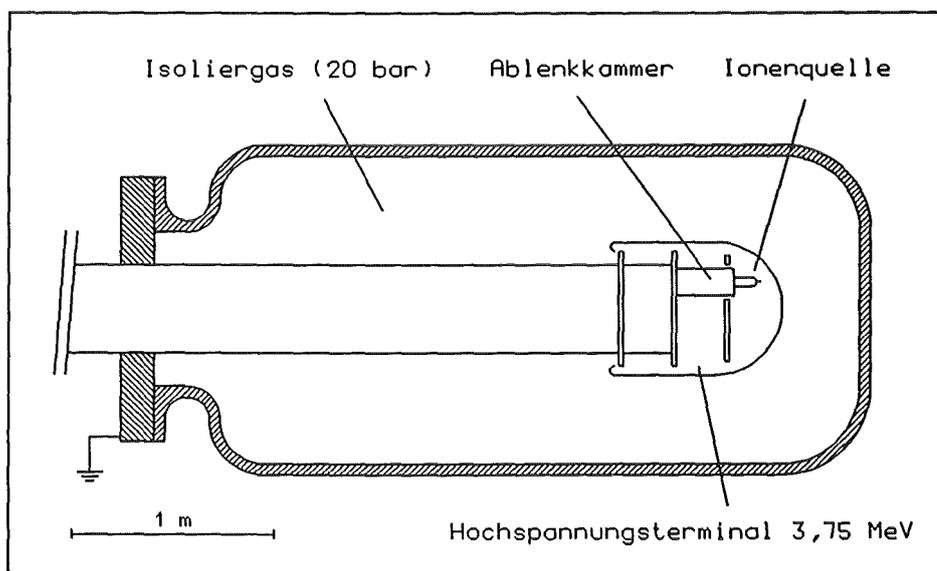


Abb. 2.1: Karlsruher 3,75 MV Van-de-Graaff Beschleuniger (p^+ , He^+). Position der Ionenquelle mit den zugehörigen Versorgungseinrichtungen auf der obersten Ebene des Hochspannungsterminals.

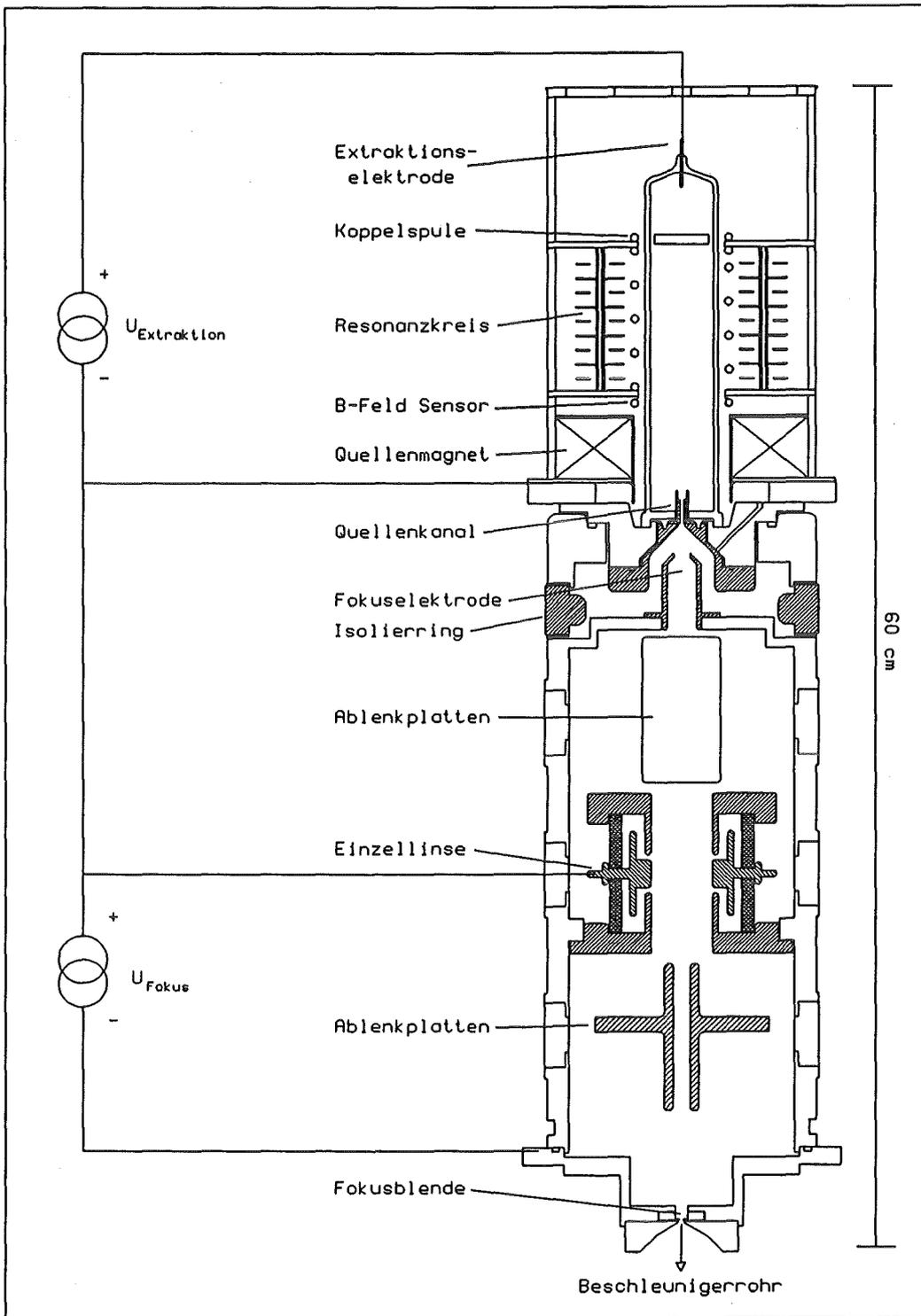


Abb. 2.2: Ionenquelle mit Fokussierungs- und Ablenkammer. Extraktionsspannung U_{ext} , Vorbeschleunigungs- und Fokusspannung U_{Focus} .

Druck: 20 bar Isoliergas (80% N₂ + 20% CO₂)
 Potential: bis 3.75 MV
 Temperatur: 20°C

Unter Hochspannung kommt es gelegentlich zu Überschlügen zwischen der verspiegelten Terminal-Glocke und dem auf Erdpotential liegenden Stahltank des Beschleunigers (Abb. 2.1). Kurzzeitig auftretende hohe Ströme in leitenden Teilen (Ladungsausgleich) und starke elektromagnetische Störfelder sind die Folge. Eine weitere, wartungstechnisch bedingte Randbedingung für eine Überarbeitung des Senderkonzeptes ist die Beibehaltung des Quellentyps nebst der Extraktionsmethode (siehe Kap. 2.2)

Die Zündung eines Neutralgases geschieht beim gegebenen Quellentyp (Abb. 2.2) durch Sekundärelektronen, die von zufällig vorhandenen Ionen oder Elektronen unter Einfluß eines elektrischen Feldes an den Wänden des Entladungsgefäßes freigesetzt werden [Val77, Bro66, Flü56]. Diese Elektronen werden vom alternierenden elektromagnetischen Feld des Senders zur gegenüberliegenden Gefäßwand beschleunigt und setzen dort weitere Elektronen frei. Bei ausreichender Energie E_s des Primärelektrons erhöht sich die Anzahl der Sekundärelektronen (Emissionskoeffizient $\delta_s > 1$ [Val77]), bis es durch den lawinenartigen Effekt zu einer ausreichend großen Zahl von Ionisationen des H₂-Gases kommt - das Plasma zündet.

Sinnvollerweise sollte eine neue Sendertechnik statt Röhren, die relativ empfindlich gegen Vibration und Überdruck sind, Leistungstransistoren verwenden. Für eine solche Technologie sind aber die hohen Ausgangsspannungen problematisch, die ein kapazitiv an das Plasma gekoppelter Sender bieten muß. Die Senderleistung wird statt dessen bei solchen Sendern üblicherweise induktiv über eine Spule in das Ionisationsgefäß eingekoppelt [Kör57, Kör60].

Das elektrische Feld, das die Zündung des Plasmas bewirken kann,

ist eine Überlagerung des in der Spule induzierten transversalen Feldes E_\perp und des Feldes E_L , welches sich durch Spannungsabfall zwischen den Spulenden aufbaut. Die Koppelspule samt ihrer eigenen und einer parallel geschalteten Kapazität wird mit ihrer Resonanzfrequenz betrieben; das Längsfeld überwiegt (Abb. 2.3). Die Frequenz f wird nun so gewählt, daß ein Elektron auf dem Weg längst der Spule durch das Entladungsgefäß gerade auf die maximale Energie beschleunigt wird: ein Elektron,

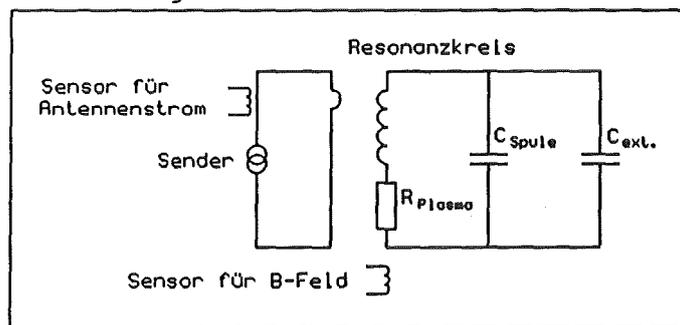


Abb. 2.3: Ersatzschaltbild des HF-Senders ($f = 27$ MHz) mit Resonanzkreis zur Plasmaheizung und Sensorspulen des selbstabgleichenden VCOs.

das während einer Periode T des Feldes zum Zeitpunkt t_0 emittiert wird, soll zum Zeitpunkt des Nulldurchgangs des Feldes, $t = T/2$, die gegenüberliegende Gefäßwand erreichen. Eine Abschätzung der mittleren freien Weglänge der Elektronen im Gas zeigt, daß dieser Vorgang bei den gegebenen Gefäß- und Druckverhältnissen möglich ist [Nas71].

Für die Bewegung des Elektrons im Feld gilt

$$\ddot{x}(t) = \frac{e}{m_e} \cdot E_0 \sin(\omega t) \quad (2.1)$$

Nebenbedingung der Integration ist die Emissionsgeschwindigkeit der Elektronen von der Wand

$$\dot{x}(t=t_0) = v_0 \quad (2.2)$$

Typische Werte der Emissionsenergie E_0 von Sekundärelektronen liegen bei einigen wenigen Elektronenvolt [Val77]. Die Integration von (2.1) ergibt für die Energie E , mit der die Elektronen auf die Wand zum Zeitpunkt $t = T/2$ auftreffen

$$\sqrt{\frac{2E}{m_e}} = \frac{e|E_0|}{\omega m_e} \cdot (\cos\varphi + 1) + \sqrt{\frac{2E_0}{m_e}} ; \quad (2.3)$$

wobei φ : Phasenlage der Emission zum elektromagnetischen Feld

E_0 : Emissionsenergie des Elektrons.

Fordert man für die erreichte Energie E zur Aufrechterhaltung des Sekundärelektronenprozesses mindestens

$$E > E_s , \quad (2.4)$$

so ist mit (2.3) die dazu notwendige Feldstärke definiert. Die weitere Integration von (2.1) liefert mit der Randbedingung

$$x(t=t_0) = 0 \quad (2.5)$$

den zurückgelegten Weg $x(t)$ des Elektrons. Dieser soll nach $t = T/2$ gerade die Gefäßhöhe h sein (siehe oben). Damit ergibt sich

$$x(t=T/2) \doteq h = \frac{e|E_0|}{\omega^2 m_e} [(\pi - \varphi) \cos \varphi + \sin \varphi] + \frac{V_0}{\omega} (\pi - \varphi) \quad (2.6)$$

Auflösen von (2.3) nach E_0 und einsetzen in (2.6) liefert die Frequenz des angelegten Feldes, bei der sich die optimale Zündbedingung (2.4) einstellt:

$$f = \frac{(\pi - \varphi) \cos \varphi + \sin \varphi}{\pi h \sqrt{2m_e}} \left[(\pi - \varphi) \sqrt{E_0} + \frac{\sqrt{E_s - E_0}}{\cos \varphi + 1} \right] \quad (2.7)$$

Mit den Werten

$$\begin{aligned} E_s &\geq 200 \text{ eV} && [\text{Val77}], \\ E_0 &= 0..10 \text{ eV} && [\text{Val77}], \\ \varphi &= 0.. \pi/2 \end{aligned} \quad (2.8)$$

folgt als Bedingung für den Sender:

$$f_{\text{Sender}} = 10..40 \text{ MHz.} \quad (2.9)$$

Der Plasmaschwingkreis aus Spule und Kondensator wird nun so dimensioniert, daß seine Resonanzfrequenz in diesem Bereich liegt. Seine Impedanz

$$X = \left[\frac{1}{R_{PL} + i\omega L} + i\omega C \right]^{-1} \quad (2.10)$$

reduziert sich dabei auf den reellen Wirkwiderstand

$$X_{res} = \frac{L}{R_{PL} \cdot C}, \quad C = C_L + C_{ext} \quad (2.11)$$

Die wirksame Kapazität C ist dabei die Summe aus der parasitären Kapazität C_L der Spule und der Kapazität C_{ext} des Kondensators.

Des weiteren läßt sich ein Zusammenhang zwischen der Senderleistung beziehungsweise dem Senderstrom und dem leistungsabsorbierenden Wirkwiderstand R_{PL} des Plasmas angeben. Für das Längsfeld der Spule gilt im Resonanzfall

$$|E_0| = \frac{U_0}{h} = \frac{X_{res} \cdot I_0}{h}. \quad (2.12)$$

Mit (2.3) ergibt sich der Wirkstrom I_0 (Scheitelwert) als Funktion von R_{Pl}

$$I_0 = \frac{h}{X_{res}(R_{Pl})} \cdot \omega_{res}(R_{Pl}) \cdot \frac{\sqrt{(2m_e E_s)} - \sqrt{(2m_e E_0)}}{e(\cos\phi + 1)}. \quad (2.13)$$

Durch $X_{res}(R_{Pl})$ nach (2.11) ist ersichtlich, daß dem Sender außer durch ohmsche Anteile im Schwingkreis keine Leistung entnommen wird, solange das Plasma nicht gezündet hat ($R_{Pl}=0 \Rightarrow I_0=0$). Aus der Impedanz X (2.10) folgt im Resonanzfall, daß der Imaginäranteil verschwindet:

$$\omega_{res}^2(R_{Pl}) = \frac{1}{LC} - \frac{R_{PL}^2}{L^2}. \quad (2.14)$$

Die Resonanzfrequenz des durch das Plasma gedämpften Schwingkreises ändert sich also mit den Plasmaeigenschaften - insbesondere im Moment des Zündens. Diese Tatsache legt den Entwurf einer automatischen Abstimmeinheit nahe. Dadurch kann die Reflexion der Senderleistung an der Koppelspule verhindert werden, wenn sich durch geänderte Plasmaparameter die Resonanzfrequenz verschiebt und damit eine Fehlanpassung eintreten würde. Hierdurch können auch die Veränderungen, die mit der normalen Alterung einer Quelle einhergehen, kompensiert werden. Eine solche Frequenzregelung muß über Sensoren den laufenden Betrieb des Plasmas beobachten und entscheiden können, ob die momentane Senderfrequenz über oder unter der Resonanzfrequenz liegt. Zu diesem Zwecke kann man sich zunutze machen, daß sich ein Schwingkreis gegenüber einer angelegten Wechselspannung im Resonanzfalle wie ein ohm'scher Widerstand verhält, darüber und darunter jedoch eher kapazitiv beziehungsweise eher induktiv. Demzufolge ergeben sich auch für die verschiedenen oszillierenden Ströme und Magnetfelder unterschiedliche Phasenlagen zueinander.

Aus Anpassungsgründen an den Innenwiderstand des Senders (50 Ohm) wird der Plasmaschwingkreis über eine Koppelspule an den Sender angeschlossen (1 Windung, Transformatorprinzip, Abb. 2.3). Über eine Sensorspule an der Zuleitung vom Sender zur Koppelspule [Sch81] und eine weitere, die die Phasenlage des B-Feldes der Schwingkreisspule registriert, erhält man zwei phasenkorrelierte Spannungssignale, die bei Resonanz um 180° gegeneinander verschoben sind. Abseits dieser Frequenz tendiert die Differenz gegen 90° bzw. 270° - damit ist ein regelungstechnischer Ansatzpunkt gegeben.

2.2 Technische Realisation: selbstabgleichender HF-Sender

Der Frequenzgenerator (VCO) mit automatischer, plasmaabhängiger Frequenzregulierung wurde neu entwickelt. Über Sensorenspulen wird die Phasenlage des Senderstromes zur Antenne und die des vom Schwingkreis erzeugten Magnetfeldes gemessen (Abb. 2.2 und 2.3). Ihre ursprüngliche Phasenverschiebung von 180° bei der Resonanzfrequenz des Schwingkreises (etwa 27 MHz) wird zunächst über geeignete RLC-Glieder auf eine Differenz von 90° umgesetzt. Anschließend werden die Signale durch schnelle Komparatoren (AD96687) auf ECL-Pegel gebracht und über eine verdrahtete Oder-Verknüpfung gemischt (Abb. 2.4, 2.5, 2.6). Eine Effektivwertgleichrichtung dieses Signals ergibt dann einen Spannungspegel U_{OR} , der von der Frequenzlage des VCO abhängig ist:

$$\bar{U}_{OR}(f < f_{res}) < \bar{U}_{OR}(f = f_{res}) < \bar{U}_{OR}(f > f_{res}). \quad (2.15)$$

Nachgeschaltete Komparatoren entscheiden dann, ob eine frequenzkontrollierende Spannung U_f korrigiert werden muß oder im Falle von $f = f_{res}$ unverändert bleiben kann. Mit einer spannungsgesteuerten Kapazitätsdiode (BB204) in einer modifizierten Colpittschaltung wird anschließend die Senderfrequenz von

$$f = 27 \text{ MHz} \pm 2,5 \text{ MHz} \quad (2.16)$$

generiert (Abb. 2.7). Das Signal wird von einem Vorverstärker und einer HF-Leistungsendstufe (Modell rf-A201 und Modell Kal-mus-170) auf maximal 200W an 50 Ohm verstärkt. Der Wirkungsgrad beträgt nach Datenblattangaben etwa 50%.

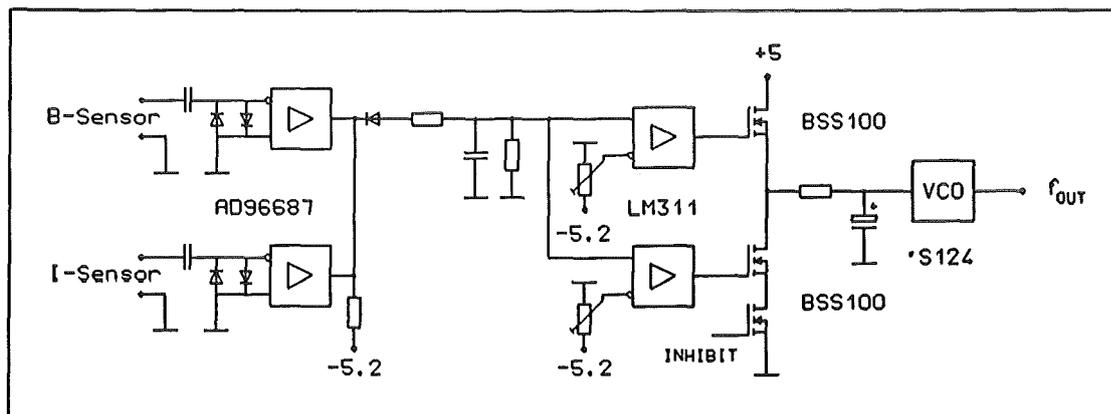


Abb. 2.4: Sensoreingänge des VCO. Aufbereitung der Phaseninformation durch schnelle ECL-Komparatoren (AD96687). Langsame Komparatoren (LM311) schalten die phasenabhängige Frequenzregelung.

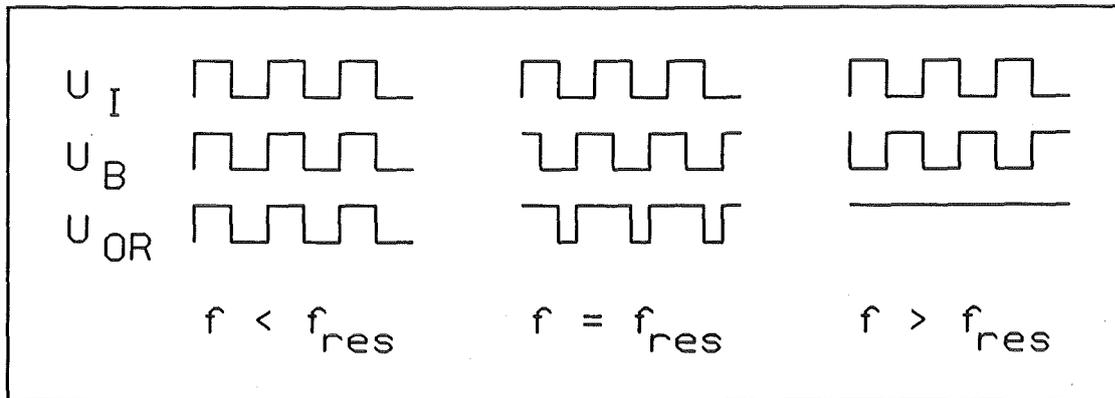


Abb. 2.5: Phasenvergleich durch ODER-Verknüpfung der Antennenstromphase (U_I) und der B-Feldphase (U_B) liefert nach Effektivwertgleichrichtung von U_{OR} die VCO-Spannung.

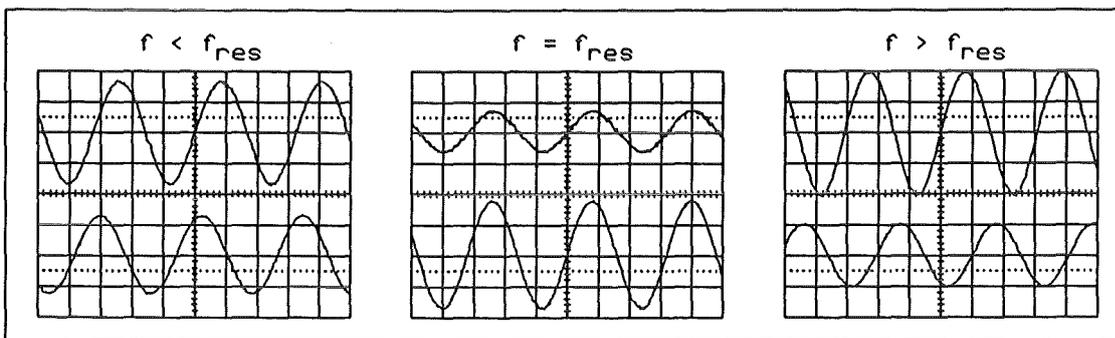


Abb. 2.6: Oszillogramme der Sensorsignale von Antennenstrom (oben) und Magnetfeld der Resonanzkreisspule (unten). Bei f_{res} ist der Antennenstrom minimal bei maximalem B-Feld.

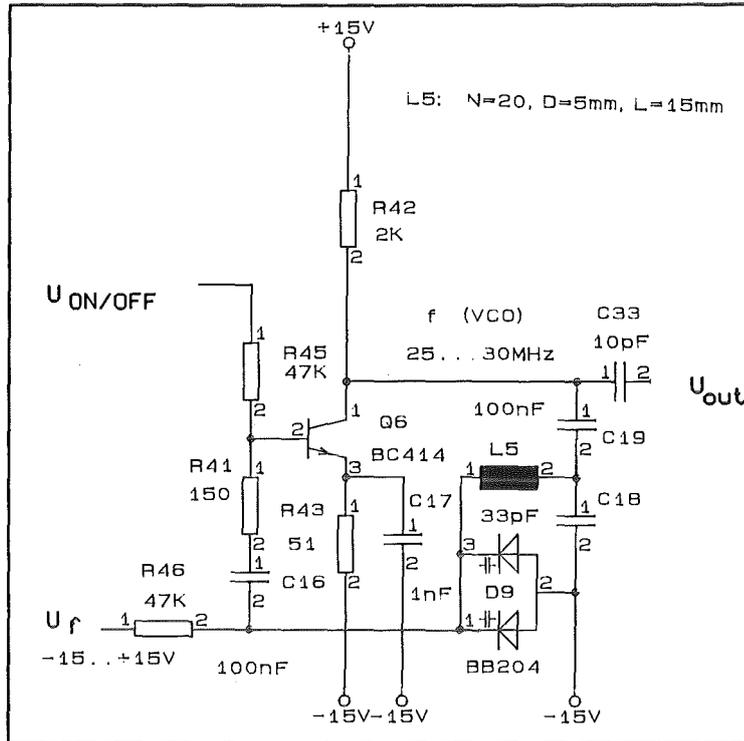


Abb. 2.7: Modifizierte Colpitts-Schaltung mit Kapazitätsdiode ($C_{\text{Diode}} = C(U_f)$) als spannungsgesteuerter Sinusgenerator (U_f).

2.3 Extraktion: Grundlagen

Protonen aus einem Plasma extrahieren heißt, daß positive Ionen das in der Summe neutrale Gemisch von Ionen- und Elektronengas verlassen und gezielt durch den Quellenkanal (Abb. 2.2) transportiert werden sollen. Man betrachte hierzu zunächst die Ladungs- und Potentialverhältnisse, die sich im Randbereich des Plasmas zur Gefäßwand hin einstellen (Abb. 2.8) [Che77]. Aufgrund der höheren Beweglichkeit der Elektronen ($T_e \gg T_i$) lädt sich die nichtleitende Gefäßwand negativ auf. Als Folge bildet sich eine Randzone d , in der Elektronen verarmen.

$$n_e = n_0 e^{e\Phi/kT}, \quad \Phi < 0 \quad (2.17)$$

wobei n_e : Elektronendichte,
 n_0 : Plasmadichte ($x < 0$),
 Φ : Potential

Positive Ionen, die mit ihrer thermischen Energie $E_i(x=0)$ durch den Grenzbereich zwischen dem neutralen Plasma und der Verarmungszone diffundieren, werden auf die Wand zu beschleunigt

$$E_i(x) = E_i(0) - e\Phi(x) \quad , \quad E_i = \frac{1}{2} m_i v_i^2 \quad (2.18)$$

Die Kontinuitätsbedingung im Gleichgewichtszustand erfordert

$$n_0 v_0 = n_i(x) v_i(x) = n_e(x) v_e(x) . \quad (2.19)$$

Die größere Beweglichkeit der Elektronen ($v_e > v_i$) bewirkt also den positiven Ladungsüberschuß $n_i > n_e$ in der Randzone. Setzt man in die Poissongleichung für das Randgebiet

$$\Delta\Phi = - \frac{e(n_i - n_e)}{\epsilon_0} \quad (2.20)$$

n_i und n_e ein [$v_i(x)$ aus (2.19) in (2.18) $\Rightarrow n_i$; n_e nach (2.17)], ergibt sich für das Potential in der Randzone

$$\Delta\Phi = \frac{en_0}{\epsilon_0} \left[\sqrt{1 - \frac{2e}{m_i v_0^2} \Phi - e^{e\Phi/kT_0}} \right] , \quad \Phi < 0 . \quad (2.21)$$

Mit der Annahme, daß irgendwann für $x \rightarrow d$ das Potential Φ genügend groß wird ($\Phi < 0$, $|\Phi| \gg 1$) kann der zweite Term in (2.21) vernachlässigt werden. Letztlich ([Che77]) folgt für den Zusammenhang zwischen Ladungsdichte, Diffusion und Potential an der Wand ($x = d$) das Langmuir-Child-Gesetz:

$$j = en_0 v_0 = - \frac{4\epsilon_0}{9} \sqrt{\left(\frac{2e}{m_i}\right) \frac{\Phi_d^{3/2}}{d}} . \quad (2.22)$$

Damit ist das Potential Φ_d beschrieben, das sich an der Wand durch die Ionendiffusion v_0 bildet. Dieser Diffusionsstrom läßt sich auch durch eine Öffnung in der Gefäßwand aufrechterhalten, indem man ein nach (2.22) geeignetes Potentialgefälle in diesem Bereich anstelle des sich zu einer Wand hin bildenden Potentials einstellt (Abb. 2.9). Im vorliegenden Fall wird das leitfähige Plasma über eine Elektrode an der Quellschleife auf ein Extraktionspotential $\Phi = U_{\text{ext}}$ von einigen keV gelegt; die zugehörige Kathode wird durch ein metallisches Innenteil im Extraktionskanal gebildet (Abb. 2.2). Durch Variation von U_{ext} kann die Position der Grenzschicht Plasma-Randzone in der Öffnung und damit ihre Krümmung in dieser Öffnung beeinflußt werden [Min90]. Da die Protonen das Plasma senkrecht zur Grenzschichtoberfläche verlassen, kann somit eine Fokussierung der Protonen auf die Kanalöffnung erzielt werden. Eine Erhöhung des aus dem Plasma

extrahierten Stromes kann dagegen nur durch eine Erhöhung der Plasmadichte n_0 erreicht werden (2.22). Damit aber erhöht sich auch das Wandpotential Φ_d , was wiederum zur Folge hat, daß die angelegte Spannung U_{ext} steigen muß, um nach wie vor optimale Extraktionsbedingungen zu haben. Zur Erhöhung der Plasmadichte zumindest im Extraktionsbereich trägt ein statisches, inhomogenes Magnetfeld bei [Val77]. Das B-Feld von etwa 0,1 T wird durch einen Elektromagneten in der Höhe des Quellenkanals erzeugt (Abb. 2.2). Bei den vorliegenden Gegebenheiten ($2r = 4,5$ mm, $d = 4,8$ mm, $U_{ext} \approx 4$ keV) läßt sich nach (2.22) - unter idealen Bedingungen - ein Protonenstrom von einigen Milliampere aus dem Plasma gewinnen. Bei der Wahl von U_{ext} ist zu beachten, daß das Plasma kein idealer Leiter ist und somit ein Spannungsabfall bis hin zur Extraktionsöffnung auftritt. Weiterhin ist zu bedenken, daß unter realen Bedingungen Fluktuationen in der Plasmarandzone, Raumladungseffekte und Inhomogenitäten im Extraktionsfeld durch metallische Bedampfun-gen auf isolierenden Teilen im Kanalbereich den Strom einschränken, der tatsächlich durch den Kanal transportiert werden kann.

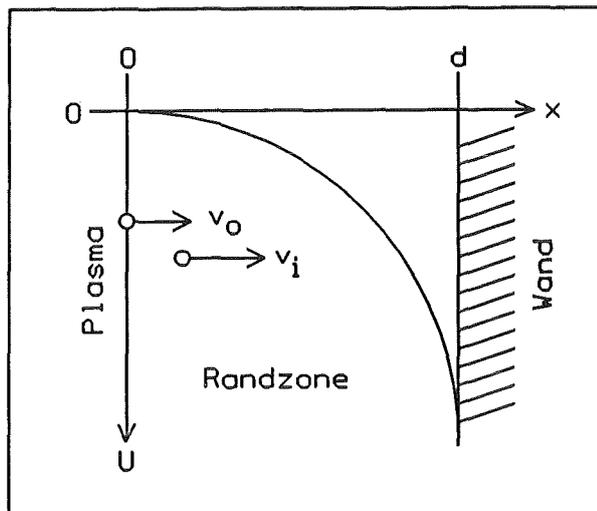


Abb. 2.8: Negative Aufladung der Gefäßwand durch ungleiche Driftgeschwindigkeiten $v_0(e^-) > v_i(p^+)$ führt zu p^+ -Überschuß in der Randzone.

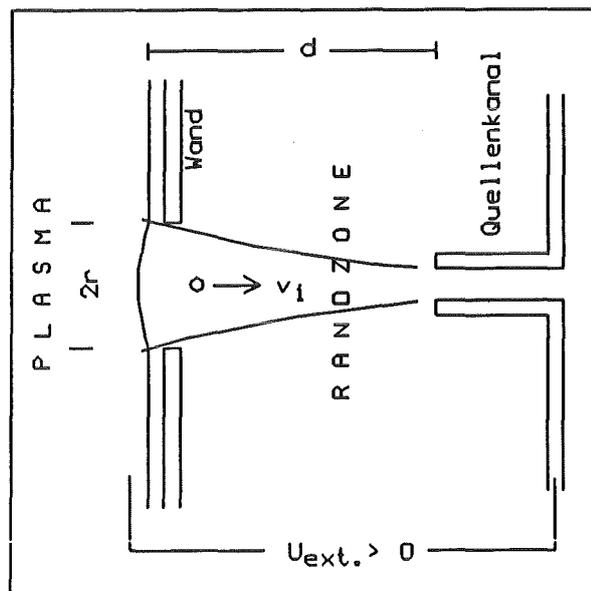


Abb. 2.9: Extraktion von p^+ -Ionen durch Anlegen der Spannung U_{ext} , die das Wandpotential U ersetzt.

2.4 Technische Realisation: taktbare Extraktionsspannung

Die begrenzte thermische Belastbarkeit der Quelle limitiert den extrahierbaren Strom. Es sind insbesondere das obere Ende des metallischen Quellenkanals und die Glasscheidewand am Quellenende zu nennen. Die Glaswand zwischen dem Plasma und der Elektrode für die Extraktionsspannung soll die Elektrode vor dem Beschuß mit Elektronen schützen. Gerade die hohen Anforderungen an einen gepulsten Protonenstrahl (siehe Kap.4) führten in der Vergangenheit zu einem schnellen Quellentod, denn die Pulsung des Strahls geschieht erst nach der Extraktion aus der Quelle in der Ablenkkammer (Abb. 2.2 und Kap.3). Die Belastung kann durch eine Pulsung der Extraktionsspannung reduziert werden. Die Protonen sollen nur dann in der ganzen erforderlichen Stromdichte j aus dem Plasma extrahiert werden, wenn der Strahl in der Ablenkkammer gerade die pulsdefinierende Blende trifft. Im Pflichtenheft des zu diesem Zwecke neu entworfenen Extraktionsnetzteils stehen deshalb die 100 kHz-Modulation der Ausgangsspannung (siehe Kap. 1.4) sowie ein einstellbarer Spannungsbereich bis etwa 10 kV bei einer Pulsleistung von bis zu 100 W.

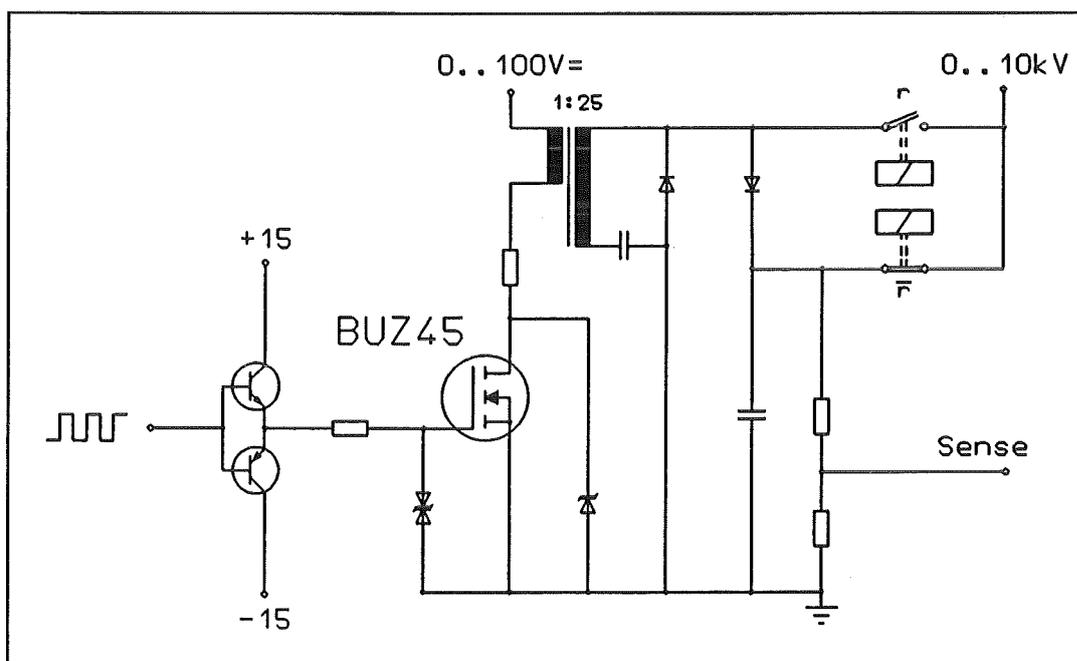


Abb. 2.10: Schaltung zur Erzeugung der gepulsten Extraktionsspannung. Der Hochspannungstransformator wird in Resonanz betrieben.

Verwirklicht wurden diese Anforderungen mit einem Schaltnetzteil, das ähnlich wie ein Tesla-Transformator arbeitet. Ein hochspannungsfester Leistungstransistor (MOSFET BUZ94) taktet eine Gleichspannung von bis zu 100V im Primärkreis N1 eines

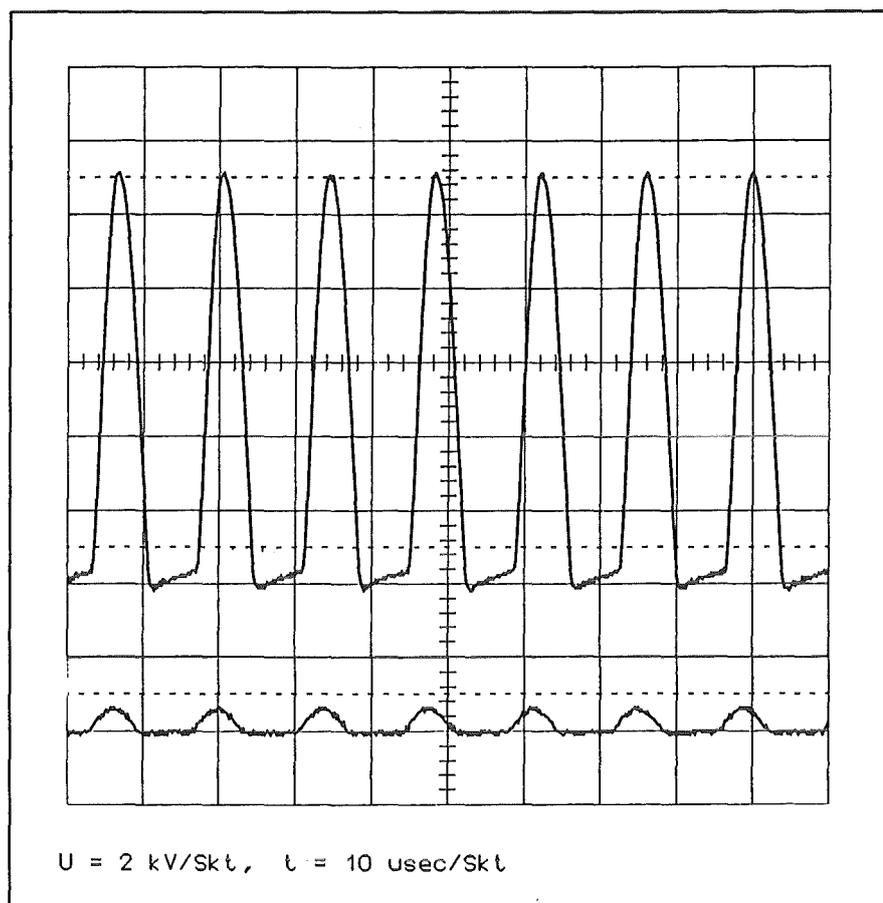


Abb. 2.11: Minimal und maximal einstellbare Spannungspulse des Extraktionsnetzteils am Lastwiderstand $R_L = 1 \text{ M}\Omega$.

Schalenkerntransformators mit der Resonanzfrequenz der Sekundärwicklung N_2 ($N_1:N_2 = 1:25$). Durch eine besonders kapazitätsarme Wickeltechnik der Sekundärspule konnte eine Resonanzfrequenz von bis zu 100 kHz erzielt werden. Ein anschließendes Netzwerk aus Dioden und Kondensatoren nebst Hochspannungsrelais erlaubt die Gleichrichtung der Hochspannungspulse am Trafoausgang für die Generierung eines kontinuierlichen Protonenstroms oder die direkte Verwendung des Ausganges als gepulste Extraktionsspannung (Abb. 2.10, 2.11). Eine an den Ausgang phasengekoppelte Wechselspannung steht außerdem als Stimulationssignal für eine Ablenkeinheit an der Ablenkkammer zur Verfügung. Die gepulste Extraktion kann also mit der Ablenkung synchronisiert werden.

Sorgfältig eingesetzte Schutzschaltungen schützen die Elektronik vor den Auswirkungen der in Kapitel (2.1) bereits erwähnten Hochspannungsüberschläge. Vor allem der Leistungs-MOSFET ist besonders empfindlich gegen auch sehr kurze Überspannungen ($U > 1,2 \text{ kV}$). Er ist aber wegen seines geringen Einschaltwiderstandes ($R_{ON} < 1 \text{ Ohm}$) notwendig, der die thermische Belastung gering halten kann - kürzeste Ein- und Ausschaltzeiten im Nanosekundenbereich vorausgesetzt. Kurze Schaltzeiten unterstützen zudem den Teslaeffekt ('Funkenstrecke').

Die komplette Schaltung konnte äußerst kompakt auf einer Leiterplatte im 'Europa-lang'-Format (100 x 220 mm²) aufgebaut werden.

Die Daten bei einer Versorgungsspannung von 110 V, 440 Hz:

$$U_{DC} = 0,5 \text{ kV} \dots 8 \text{ kV an } R_L = 1M\Omega$$

$$U_{AC} = 0,5 \text{ kV} \dots 11 \text{ kV an } R_L = 1M\Omega$$

$$f = 100 \text{ kHz}$$

2.5 Ergebnisse

Der Elektronikaufbau zum Betrieb des Senders und des Extraktionsnetzteils am beschleunigerinternen Versorgungsnetz (Generator in der Umlenkrolle des Ladungstransportbandes: 110V, 440 Hz) wurde auf einer Trägerplatte montiert (Abb. 2.12, 2.13).

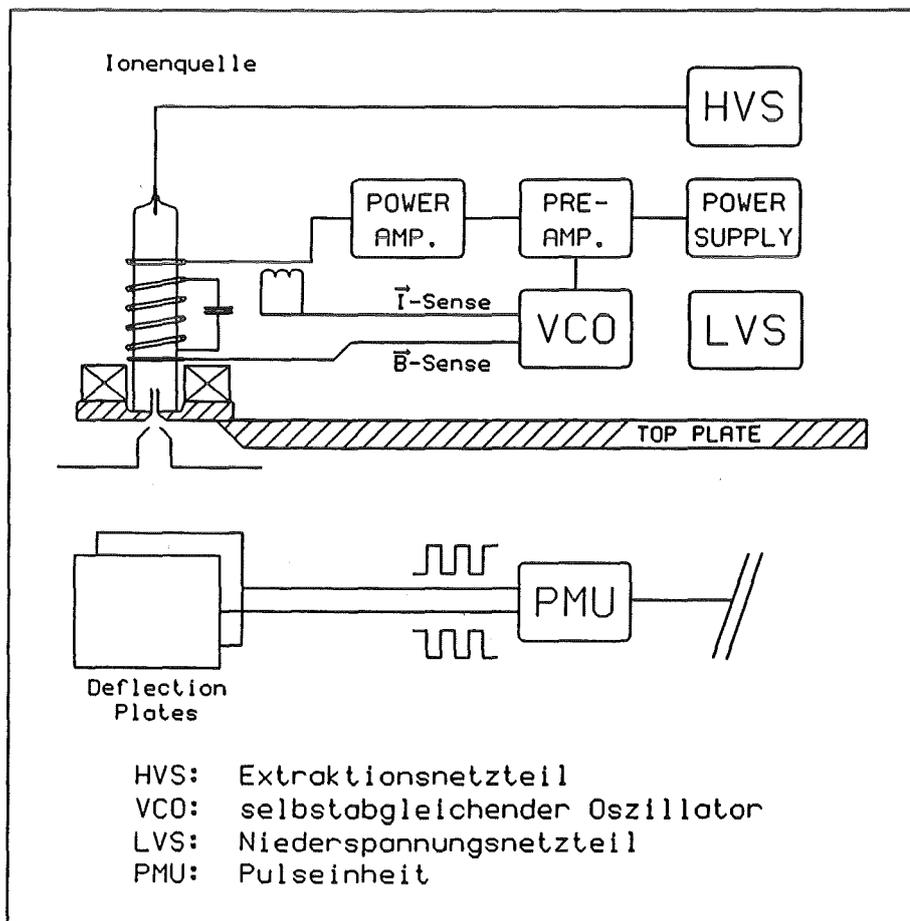


Abb. 2.12: Blockschaltbild der Ionenquelleninstallation und der Pulsung der Strahlableitplatten im Hochspannungsterminal des Beschleunigers.

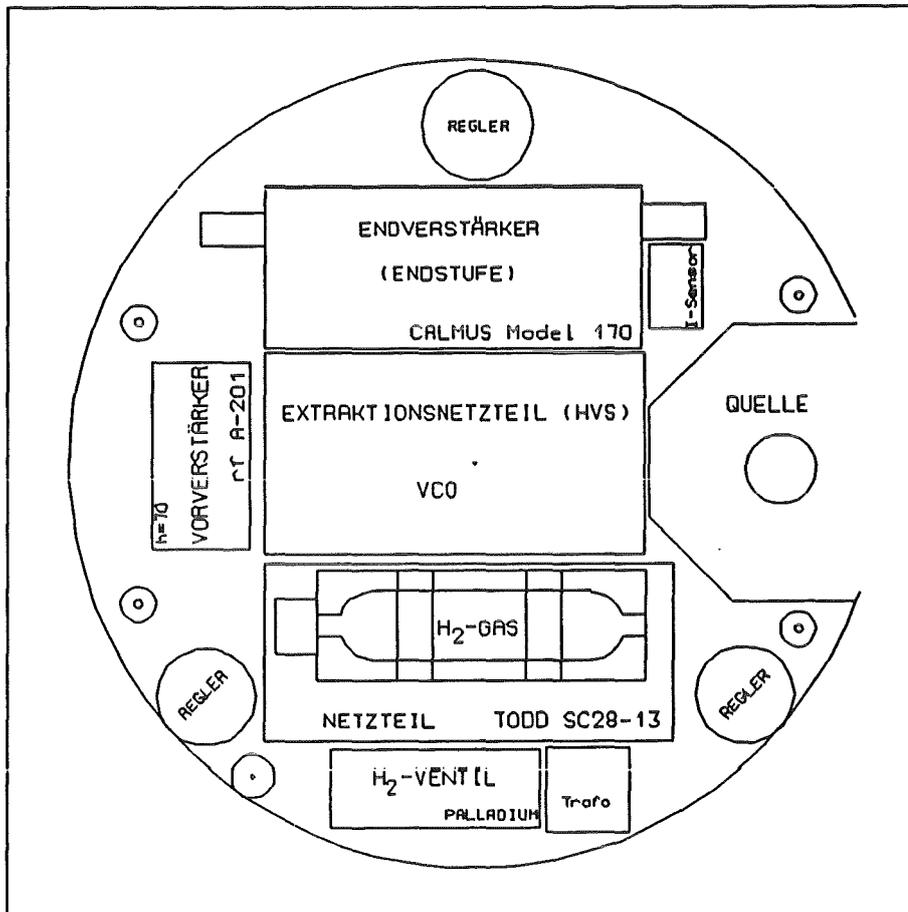


Abb. 2.13: Aufbau der Ionenquelleninstallation auf der obersten Ebene des Hochspannungsterminals.

Die komplette Installation ist austauschbar gegen die bisherige Quellenelektronik.

Vergleichsmessungen zwischen alten und neuer Technik wurden auf einem Teststand durchgeführt. Dieser ist in den Komponenten der Abb. 2.2 mit der Beschleunigerinstallation identisch - bis auf die im Beschleuniger vorhandene Isoliergasatmosphäre von 20 bar und 20° C sowie die Hochspannung von 3,75 MV. Isolationstechnisch und thermisch gesehen ist also der Betrieb auf dem Teststand ein Härtetest unter ungünstigen Bedingungen. Günstig sind dagegen die Bedingungen zur Messung der zu vergleichenden extrahierbaren Protonenströme. Bei der Abstimmung der Quelle (B-Feld, HF-Sender) im normalen Servicebetrieb am Beschleuniger werden üblicherweise alle leitenden Innenteile der Ablenkammer mit dem Kammergehäuse selbst kurzgeschlossen. Um mit diesem 'Meßaufnehmer' alle aus der Quelle extrahierten Protonen aufzusammeln, muß zwischen dem Quellenkanalende und der Fokuselek-

trode (Abb. 2.2) eine Spannung von einigen kV angelegt werden. Dies verhindert, daß Protonen auf den Wänden der trichterförmigen Öffnung am Kanalende landen. Die dazu notwendige Spannung ist aber nur unter Isoliergasbedingungen erreichbar. Bei 'offenem' Beschleuniger muß also in Kauf genommen werden, daß Protonen mit einigen keV auf die Außenseite der Fokuselektrode treffen und Sekundärelektroden freisetzen. Die Messung des absoluten extrahierten Stromes ist somit nicht möglich. Am Teststand hingegen kann ein Faraday-Becher direkt am Quellausgang angebracht werden, der zur Vermeidung von Sekundärelektroneneffekten auf ein entsprechendes Gegenpotential gelegt werden kann ($U = 50..100 \text{ V}$).

Der Leistungsvergleich zwischen der bisherigen und der neuen Sender- und Extraktionselektronik wurde an derselben Quelle durchgeführt, da die Ionenquellen von einem Exemplar zum anderen leichte Unterschiede in den erreichbaren Strömen aufweisen.

Zum Vergleich wurde eine systematische Untersuchung des $I_{\text{ext}}(U_{\text{ext}})$ -Verhaltens der Quelle mit beiden Versorgungsplattformen bei unterschiedlichen Neutralgasdrücken durchgeführt. Registriert wurden der extrahierte Strom I_{ext} , die tatsächliche Extraktionsspannung U_{ext} sowie der Gasdruck nach der Ablenkkammer. Auf den Druck in der Quelle kann mit Hilfe einer Kalibrationsmessung geschlossen werden, bei der das Glasgefäß der Quelle durch eine Druckmeßzelle ersetzt wurde. Da sich im Plasmabetrieb die Strömungsverhältnisse im Kanal durch den Protonenfluß sicher etwas von denen bei der Kalibration unterscheiden, sind die absoluten Druckwerte relativ ungenau. Im Rahmen der vorliegenden Vergleichsmessung ist dies akzeptabel.

Der Vergleich zeigt:

- Bisherige Sende- und Extraktionseinheit: I_{ext} steigt selbst bei Verdopplung des Gasdruckes nur unwesentlich an. Die Senderleistung reicht nicht aus, um eine höhere Ionendichte zu erreichen (Gleichung 2.22, Abb. 2.14)
- Neue Sende- und Extraktionseinheit: im gleichen Bereich druckproportionaler Anstieg von I_{ext} . Die höhere Senderleistung - auch durch optimale Abstimmung - bewirkt eine größere Ionendichte (Abb. 2.15).

Die Tatsache, daß innerhalb einer $I_{\text{ext}}(U_{\text{ext}})$ -Messung der maximale Strom nur bei einer bestimmten, mit dem Gasdruck ansteigenden Spannung extrahiert werden kann, ist Folge des Extraktionsprozesses: U beeinflußt die Wölbung der Plasmagrenzschicht an der Emissionsöffnung und damit die Fokussierung der Protonen auf den Quellenkanal. Weiterhin fällt auf, daß auch mit neuem Sender bei weiter steigendem Gasdruck ($p > 2 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$) der extrahierte Strom nicht mehr ansteigt. Es liegt nahe, eine Erklärung hierfür in der Art des Kontaktes der U_{ext} -Elektrode mit dem Plasma um die Scheidewand herum zu suchen (siehe Kap. 2.4).

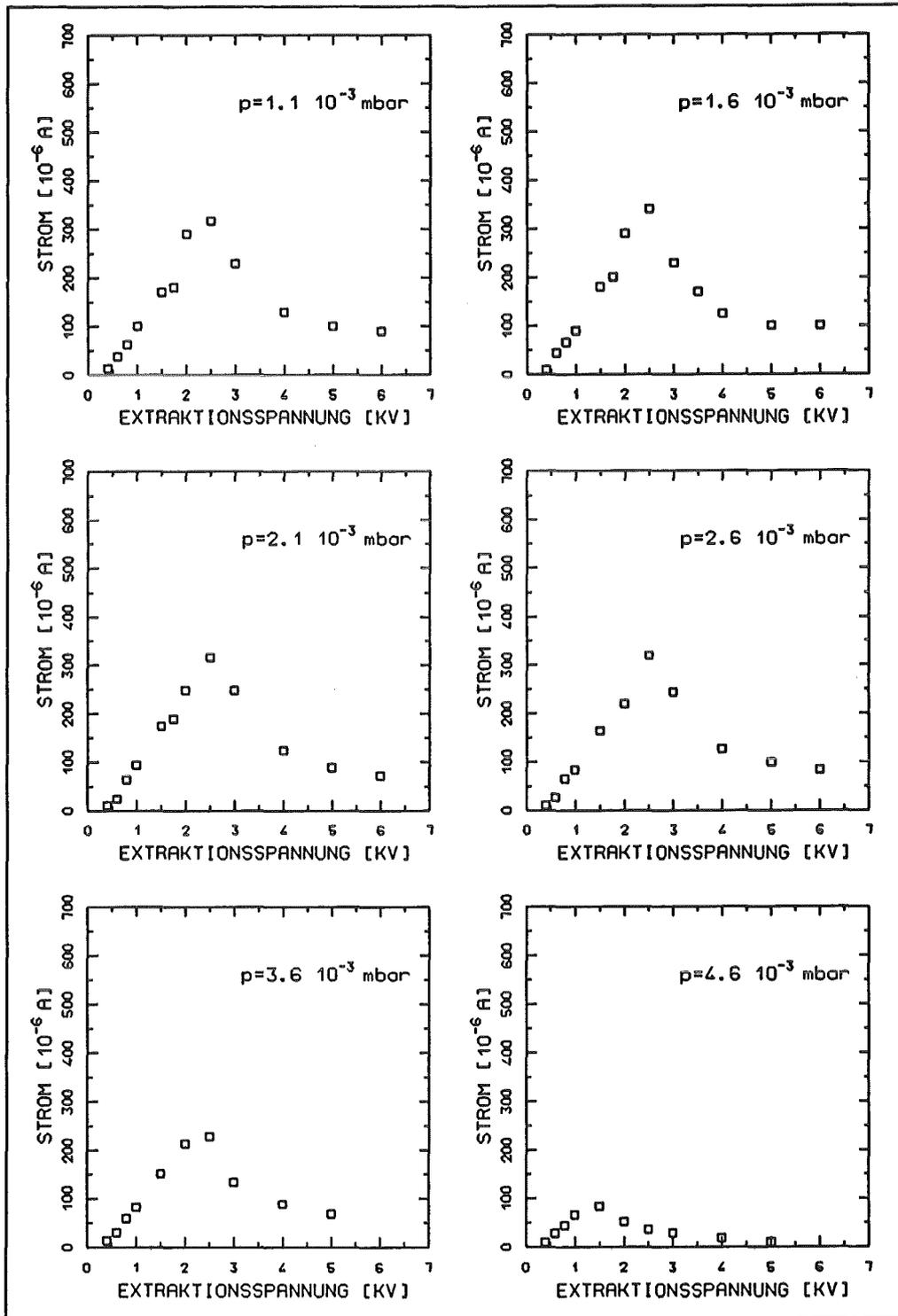


Abb. 2.14: Extrahierbarer Quellenstrom in der bisherigen Installation mit Röhrensender bei verschiedenen Neutralgasdrücken.

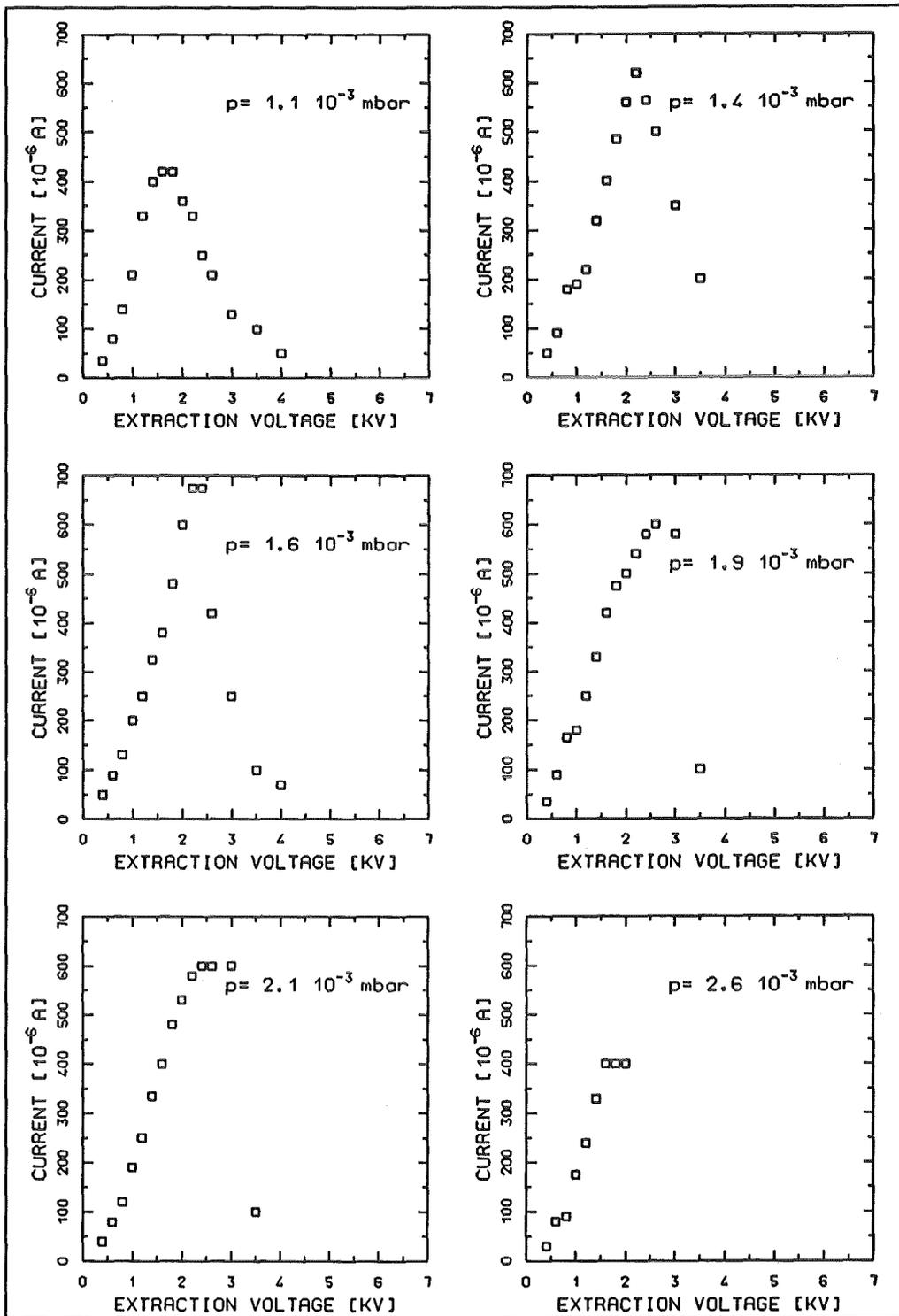


Abb. 2.15: Extrahierbarer Quellenstrom in der neuen Installation mit Halbleitersender bei verschiedenen Neutralgasdrücken.

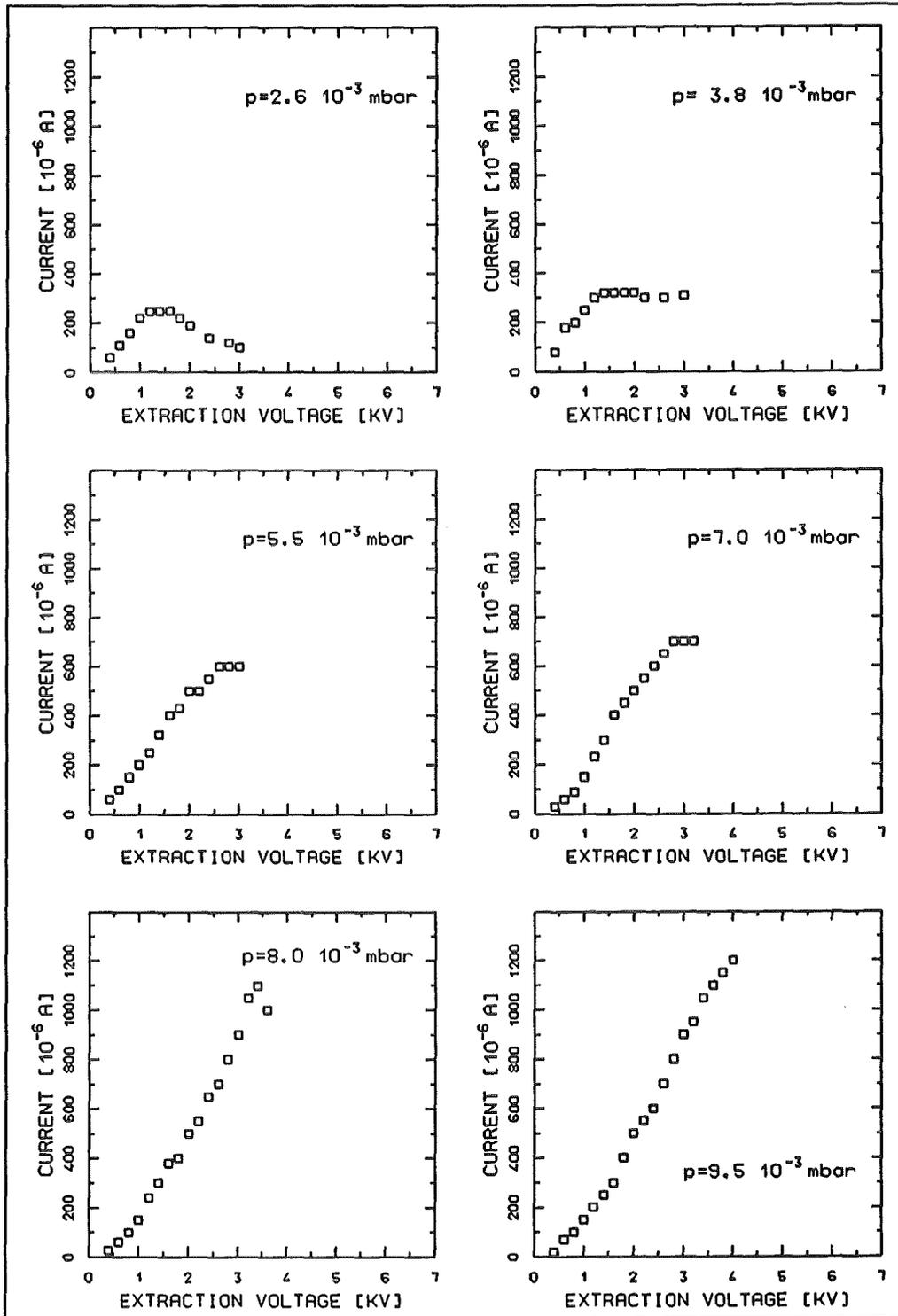


Abb. 2.16: Extrahierbarer Quellenstrom in der neuen Installation mit Halbleitersender und einer Quelle mit Aluminiumelektrode.

Das Ergebnis einer Meßreihe mit einer Quelle, deren Elektrode, bestehend aus einer Aluminiumkappe, in direktem Kontakt mit dem Plasma besteht:

- Mit geänderter U_{ext} -Elektrode kann die Quelle mit bis zu einer Größenordnung höheren Gasdrücken betrieben werden. Der Strom steigt bis 1,2 mA bei $U_{\text{ext}} = 4 \text{ kV}$, $p = 1 \cdot 10^{-2} \text{ mbar}$ (Abb. 2.16).

Aus thermischen Gründen beim Betrieb unter Laborbedingungen ist bei dieser Meßreihe die Extraktionsspannung auf 4 kV begrenzt. Im Beschleuniger selbst - also unter kühlendem Isoliergas bei 20 bar - ist ein noch höherer Strom zu erwarten, zumal der Sender mit seiner variablen Senderleistung bei der obigen Messung nicht unter Vollast betrieben werden mußte.

Die Leistungsfähigkeit des Extraktionsnetzteils zeigt Abbildung 2.11. Bei einem Lastenwiderstand von 1 M Ω kann eine gepulste Spannung von bis zu 11 kV einen Spitzenstrom von 11 mA treiben. In einem Vorversuch mit einem Prototypen des Netzteils, bei dem die Ausgangsspannung noch nicht bis auf nahezu 0 Volt in den Pulspausen abfiel, konnte die Modulierbarkeit des Extraktionsstromes gezeigt werden (Abb. 2.17). Gemessen wurde der Spannungsabfall an 1 k Ω , hervorgerufen durch die vom Faraday-Cup abfließende Ladung.

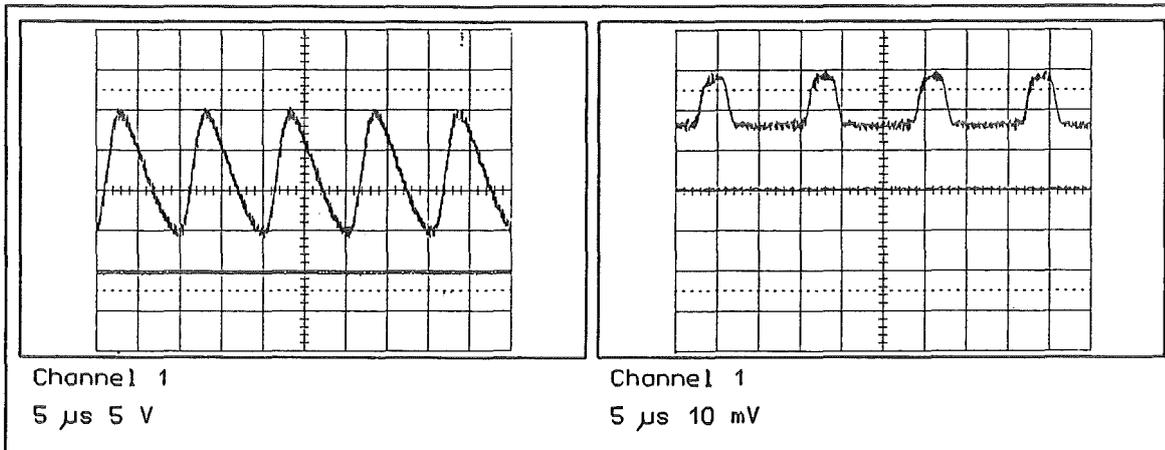


Abb. 2.17: Gepulste Extraktionsspannung (links) und extrahierter Strom (rechts, Spannungsabfall an 1k Ω) mit einem Prototypen des Extraktionsnetzteils.

In vivo - Tests im Beschleuniger demonstrierten die Funktionsfähigkeit der Prototypen-Installation unter Druck. Der dabei maximal extrahierbare Strom konnte wegen eines Defektes an der Beschleunigeranlage und in Zusammenhang damit aus Zeitgründen nicht festgestellt werden. Es konnte gezeigt werden, daß unter den Bedingungen im Beschleuniger Halbleiterelektronik betrieben werden kann, die auch den in Kapitel 2.1 erwähnten Hochspannungsüberschlägen bei über 3,5 MV widersteht.

Die vielen Stunden Betriebserfahrung auf dem Teststand und zum Teil im Beschleuniger ergeben, daß für eine Dauereinsatzreife der Anlage nur wenige Punkte der Überarbeitung bedürfen. Es sind zu nennen:

- HF-technische Einkoppelung der Sensorsignale von Antennenstrom und vom B-Feld: bei hoher Senderleistung kommt es an dieser Stelle zu Einstreuungen in den VCO, was zu Störungen der Abstimmautomatik führt;
- das Extraktionsnetzteil sollte besser stabilisiert sein;
- bessere kühlungstechnische Anpassung an die Bedingungen im Beschleuniger.



3. Ionenoptik

Nach der Extraktion aus der Quelle passieren die Protonen die Ablenkkammer. Von der Fokuselektrode (Abb. 2.2) wird der Protonenstrahl auf bis zu 20 keV in die Kammer vorbeschleunigt. Diese Eintrittsöffnung in die Kammer wird von einer elektrostatischen Linse (Einzellinse) auf die Austrittsöffnung zum eigentlichen Beschleunigungsrohr abgebildet [Law77, Sep67]. Das System bietet im Vergleich zu einer Magnetlinse den Vorteil, daß für die Vorbeschleunigung und die Fokussierung eine gemeinsame Spannungsversorgung verwendet werden kann. Da der Strahl vor der eigentlichen Beschleunigung eine Strahlpulseinrichtung passieren muß, ist die Vorbeschleunigung notwendig. Ein Protonenstrahl von unter 10 keV kinetischer Energie würde aufgrund seiner Raumladung binnen weniger Zentimeter inakzeptabel aufgeweitet sein. Die Pulsung des Strahles geschieht durch zwei um 90° gegeneinander um die Strahlachse versetzte, strahlparallele Plattenpaare. An ihnen wird eine Wechselspannung von einigen hundert Volt mit der benötigten Pulsfrequenz angelegt (250 kHz, 1 MHz, 2,5 MHz). Auf diese Weise wird gewährleistet, daß der Strahl die Austrittsblende der Kammer nur noch kurzzeitig trifft. Zusätzliche konstante Spannungen dienen der Strahllagenjustierung. Mit dieser Strahlpulsung werden Protonenpulse von etwa 10 ns Dauer produziert. Sie werden nach dem Beschleuniger durch eine 'Bunching'-Einrichtung auf unter 1 ns komprimiert. Über die Messung der Flugzeit der Neutronen, die am Strahlrohrende von den Protonen erzeugt werden (Kap.4), kann die Energie dieser Neutronen erfaßt werden - entsprechend schnelle Detektoren vorausgesetzt (Kap.6).

3.1 Einzellinse

Die Abmessungen der bisherigen Einzellinse war für die Abbildung des 20keV-Strahls über eine Strecke von 30 cm konzipiert. Es war zu untersuchen, ob bei dieser Entfernung und Strahlenergie Raumladungsprobleme bei höheren Strömen auftreten könnten.

Ein geeignetes Mittel zu diesem Zwecke sind Simulationsprogramme, die Ionenbahnen in elektrostatischen Feldern unter Berücksichtigung der Raumladung bestimmen können. Ein solches Programm, das 1975 von J.C.Whitson (ORNL, Oak Ridge) entwickelt wurde, steht in einer modifizierten Form an der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt unter dem Namen 'AXCEL' zur Verfügung [Spä88]. Ausgehend von der Vorgabe der Potentiale, auf die einzelne Komponenten in einer ionenoptischen Anordnung gelegt werden, wird vom Programm zunächst über die Laplace-Gleichung das elektrostatische Feld bestimmt. Darin werden anschließend die Trajektorien der Ionen ausgehend von einer Plasmaoberfläche bestimmt. Mit ihnen ergibt sich nun eine Raumladungsverteilung. Mit der Poissongleichung wird nun erneut das Feld be-

rechnet, darin wieder die Ionenbahnen. Iterativ werden nun erneut die Raumladung, das Feld und die Trajektorien bestimmt, bis die Ionenverteilungsfunktion konvergiert.

Im vorliegenden Fall wurde als Startfläche der Protonenbahnen die halbe Extraktionskanallänge bei einem Durchmesser von 1 mm gewählt. Dies entspricht der Taille der Protonenbahn durch den Kanal bei idealer Wölbung der Plasmagrenzschicht über dem Kanal. Abbildung 3.1 zeigt das Simulationsergebnis an der einstufigen Linsenordnung, wie sie bisher verwendet wurde. Das Resultat bei optimaler Fokusspannung ist:

- Einfache Einzellinse bei $I = 1 \text{ mA}$, $E_{\text{in}} = 2 \text{ keV}$, $U_{\text{Focus}} = 17,5 \text{ kV}$:
 - beide Ablenkplattenpaare werden tangiert,
 - Strahldurchmesser an der 2 mm - Austrittsblende etwa doppelt so groß wie die Blende selbst.

Um das offensichtlich vorhandene Raumladungsproblem zu umgehen wurde eine zweistufige Linsenordnung entworfen. Ergebnis (Abb. 3.1):

- Doppelte Linse bei $I = 1 \text{ mA}$, $E_{\text{in}} = 2 \text{ keV}$, $U_{\text{Focus}} = 20 \text{ kV}$:
 - Komponenten in der Kammer werden nicht tangiert,
 - Austrittsdurchmesser etwa in der Größe der Blende.

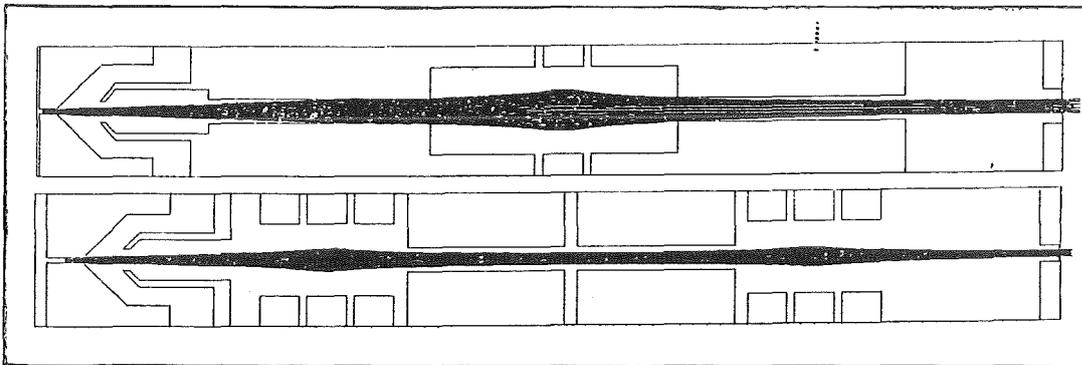


Abb. 3.1: Simulierter Protonenstrahl in der Ablenkammer mit bisheriger (oben) und neuer (unten) Ionenoptik (Programm AXCEL).

Die Fokusspannungen sind die jeweils optimalen Werte. Nach diesen Erkenntnissen wurde eine zweistufige Einzellinsenordnung aufgebaut (Abb. 3.2).

Das Fokusnetzteil wird im wesentlichen durch Sekundärelektronen belastet, die von Protonen des Strahls beim Auftreffen auf Komponenten der Ionenoptik freigesetzt werden. In einer Vergleichsmessung auf dem Teststand wurde festgestellt, daß die Belastung mit der neuen Optik halbiert werden konnte.

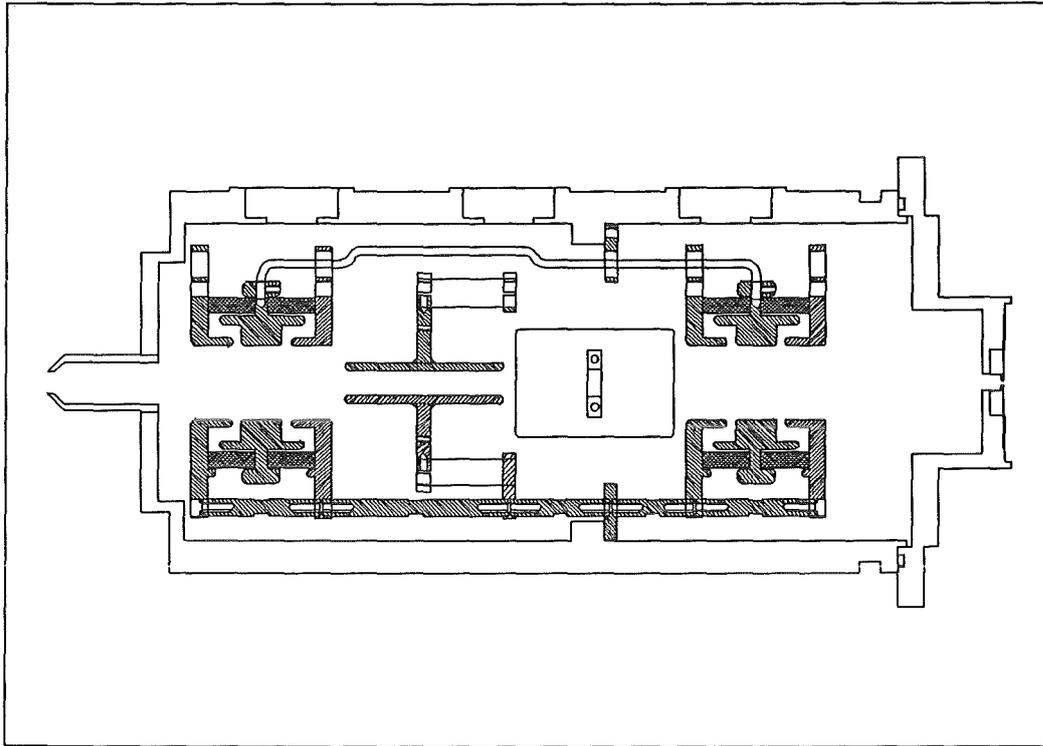


Abb. 3.2: Neue elektrostatische Linsenordnung mit 2 Einzellinsen.

3.2 Strahlpulsung

Ein weiteres Problem für die Experimente, die den gepulsten p-Strahl verwenden, entsteht durch die Art der Pulsung. Mit der geeigneten Wahl von Gleich- und Wechselspannungen an den beiden Plattenpaaren wird der Strahl derart abgelenkt, daß er auf einer Linie neben der Austrittsöffnung der Kammer hin- und herfährt. Je nach Wahl des Untersetzungsverhältnisses wird der Strahl nur nach mehreren Perioden einmal durch einen Spannungspuls über die Blendenöffnung geführt - ein Protonenpuls von etwa 10 ns Dauer tritt in das Beschleunigungsrohr ein. Das Problem ist nun, daß der Strahl auch bei größerem Abstand von der Strahlmitte noch eine endliche Protonendichte aufweist. Bei jeder Bewegung an der Blende vorbei treten also doch einige Protonen durch sie hindurch. Die so entstehenden 'Satellitenpulse' geringer Intensität erhöhen bei einer (n,γ) -Messungen in Folge der mit ihnen verbundenen geringen Zahl von Einfangereignissen den Meßuntergrund.

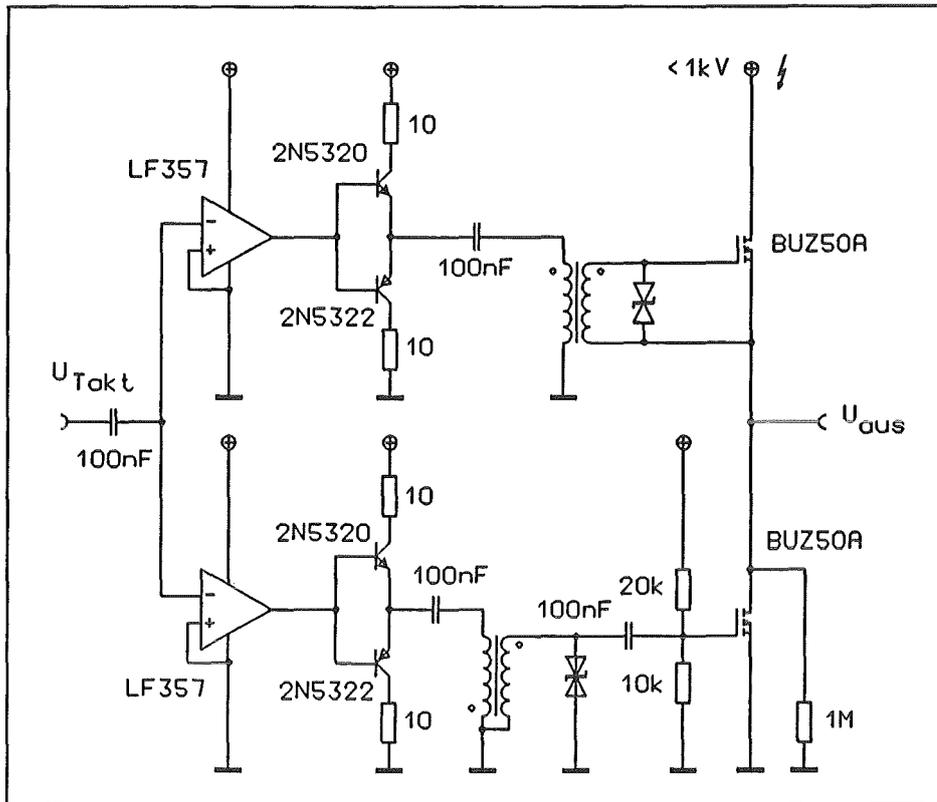


Abb. 3.3: Schaltung zur Erzeugung von Hochspannungspulsen mit extrem hoher Flankensteilheit ($8\text{kV}/\mu\text{sec}$) für die Strahlblendenplatten.

Verhindert werden kann dies, indem man die Bahnen an der Blende vorbei in den Pulspausen vermeidet. Dazu benötigt man eine mit sehr hoher Flankensteilheit getaktete Gleichspannung, die den Strahl über die Blende zieht und ihn dann in der Endstellung bis zum nächsten Puls verharren läßt. Moderne MOSFET-Halbleiter mit Sperrspannung von 1 kV (BUZ 50A) und Schaltzeiten im 100ns-Bereich vermögen dies zu leisten. Abbildung 3.3 zeigt eine Schaltung, die bis zu 1kV mit einer Flankensteilheit von $8\text{ kV}/\mu\text{sec}$ ohne ohm'sche Last und von $5,3\text{ kV}/\mu\text{sec}$ an $R_L = 1\text{ M}\Omega$ umschaltet. In einem Prototypenaufbau wurde die Pulsform an einem Ablenkplattenpaar gemessen (Abb. 3.4). Aus Zeitgründen konnte eine Untersuchung der Pulsform unter der (Strom-) Belastung am Strahl nicht durchgeführt werden. Mit dem geringen Einschaltwiderstand von 5Ω und der hohen Schaltgeschwindigkeit bei geeigneter Ansteuerung wie der vorliegenden ist der verwendete Halbleitertyp jedoch auch bei höheren Strahlströmen noch ausreichend weit von seiner Belastungsgrenze von $P = 75\text{ W}$ entfernt.

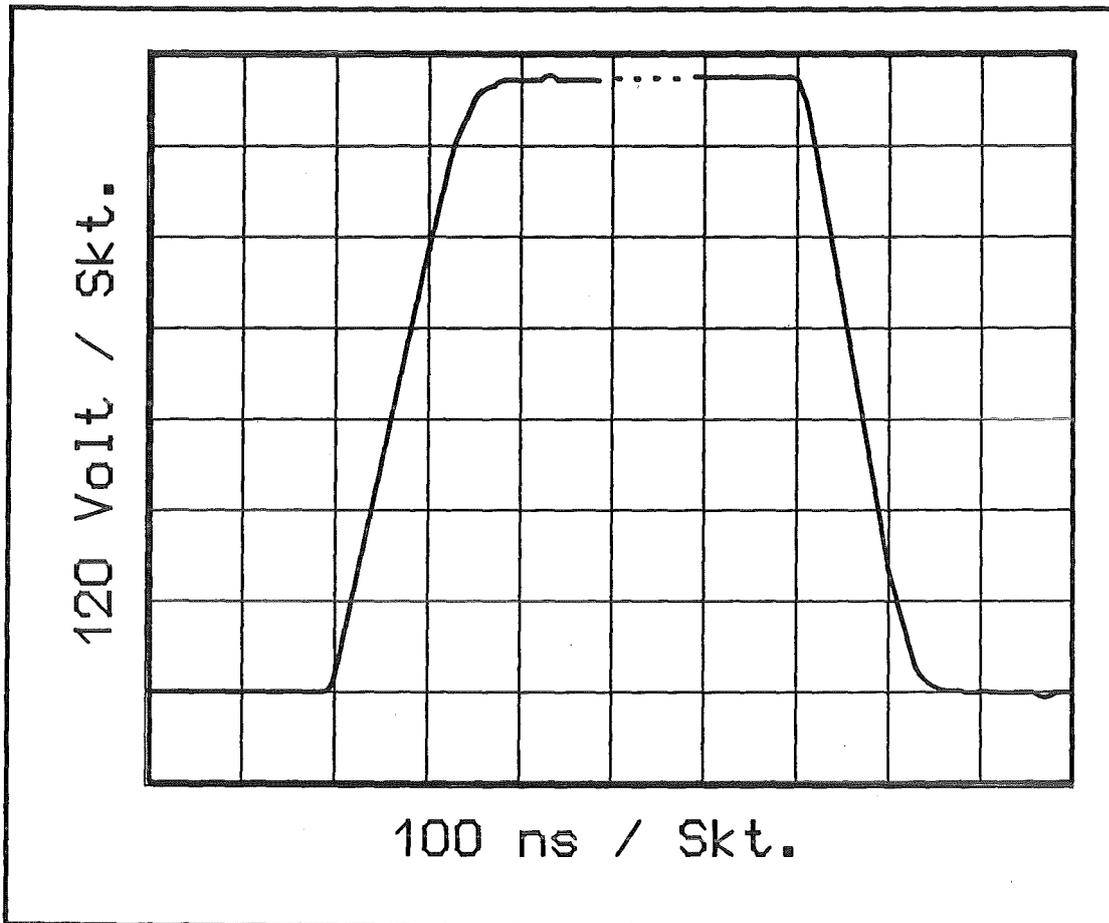


Abb. 3.4: Ausgangsspannung der Pulsschaltung an $R_{\text{Last}} = 1 \text{ M}\Omega$.

1. The first part of the document discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions and activities. It emphasizes that this is essential for ensuring transparency and accountability in the organization's operations.

2. The second part of the document outlines the various methods and tools used to collect and analyze data. It highlights the need for consistent data collection procedures and the use of advanced analytical techniques to derive meaningful insights from the data.

3. The third part of the document focuses on the role of technology in data management and analysis. It discusses how modern software solutions can streamline data collection, storage, and analysis processes, thereby improving efficiency and accuracy.

4. The fourth part of the document addresses the challenges associated with data management, such as data quality, security, and privacy. It provides strategies to mitigate these risks and ensure that the data remains reliable and secure throughout its lifecycle.

5. The fifth part of the document concludes by summarizing the key findings and recommendations. It stresses the importance of ongoing monitoring and evaluation to ensure that the data management processes remain effective and aligned with the organization's goals.

4. Das stellare Neutronenspektrum

Neutronen, deren Energiespektrum stellaren Verhältnissen entspricht, werden aus der ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Reaktion gewonnen. Die Schwellenenergie beträgt 1,881 MeV. Bei einer Protonenenergie $E = 1,881 \text{ MeV} + 31 \text{ keV}$ weist das Neutronenspektrum im Schwerpunktsystem eine der Maxwellverteilung ähnliche Energieabhängigkeit auf [Bee80, Rat88]:

$$\Phi_n(E_n) = \sqrt{\left(\frac{kT^3}{\pi}\right) E_n} \cdot e^{-E_n/kT} \quad (4.1)$$

wobei $kT = 25 \text{ keV}$.

Die Reaktionskinematik bewirkt dabei einen Öffnungswinkel von 120° in Vorwärtsrichtung.

Neben der (p,n)-Reaktion tritt die Reaktion ${}^7\text{Li}(p,\gamma){}^8\text{Be}$ auf [Ajz75]. Die γ -Energien liegen je nach Anregungszustand des Reaktionsproduktes ${}^8\text{Be}$ bei 14,74 MeV beziehungsweise 17,64 MeV. Dieser γ -Puls wird später bei der Flugzeitmessung der Neutronen als Zeitmarke verwendet (Kap. 6).

4.1 Lithiumtarget

Das Ausgangsmaterial ${}^7\text{Li}$ wird auf einen Kupferträger ($d > 1 \text{ mm}$) in einer Schichtdicke von etwa $0,5 \text{ mg/cm}^2$ ($\approx 10 \mu\text{m}$) aufgedampft. Der Kupferträger mit der vakuumseitigen Li-Schicht wird am Strahlrohrende den Protonen ausgesetzt. Durch den Protonenbeschuss wird die Lithiumschicht erwärmt. Deshalb wird das temperaturempfindliche Lithium über das Kupfer gekühlt: die Kupferscheibe ($\varnothing = 1 \text{ cm}$) steht an ihrem Rand mit Kühlwasser in Kontakt. Die im Zusammenhang mit der Herstellung und der Verwendung dieser Li-Targets auftretenden Probleme und ihre Bewältigung im Hinblick auf eine möglichst große Neutronenquellstärke ($\Phi_n \approx 1 \cdot 10^9 \text{ n/s}$) sind ausführlich bei D. Neuberger [Neu91] beschrieben.

4.2 Das Neutronenspektrum und $\sigma_{n,\gamma}$ -Messungen

Bei der Aktivierungsmessung bedeckt die zu untersuchende Probe gerade den gesamten Öffnungskegel, so daß sie einem quasistellaren Neutronenfluß ausgesetzt ist. Entsprechend den einleitenden Bemerkungen muß jedoch vor Beginn einer solchen Messung die Protonenenergie am Beschleuniger exakt justiert werden. Dazu

wird der bei der eigentlichen Aktivierung kontinuierliche Strahl gepulst und die Neutronen etwa 1 m hinter dem ${}^7\text{Li}$ -Target mit einem ${}^6\text{Li}$ -Glasdetektor registriert (${}^6\text{Li}(n,\alpha){}^3\text{H}$). Dessen Signal und der γ -Puls aus dem ${}^7\text{Li}$ -Target werden als Zeitmarkierung zur Messung der Neutronenflugzeit herangezogen. Damit ist eine exakte Justage der Neutronenenergie möglich (Abb.4.1).

Bei Messungen der γ -Kaskade aus der (n,γ) -Reaktion kann ein neutronenenergieabhängiger Wirkungsquerschnitt bestimmt werden. Hierzu wird auch während der eigentlichen Messung der gepulste Protonenstrahl verwendet, um Pulse von Neutronen zu produzieren und deren Energie via Flugzeitmessung festzustellen. Vor Meßbeginn wird mit diesem n-Spektrum wieder die Protonenenergie justiert, während der Messung registriert, ermöglicht es die n-Flußkalibrierung der (n,γ) -Ereigniszählraten bei der Bestrahlung verschiedener Proben (Kap.6).

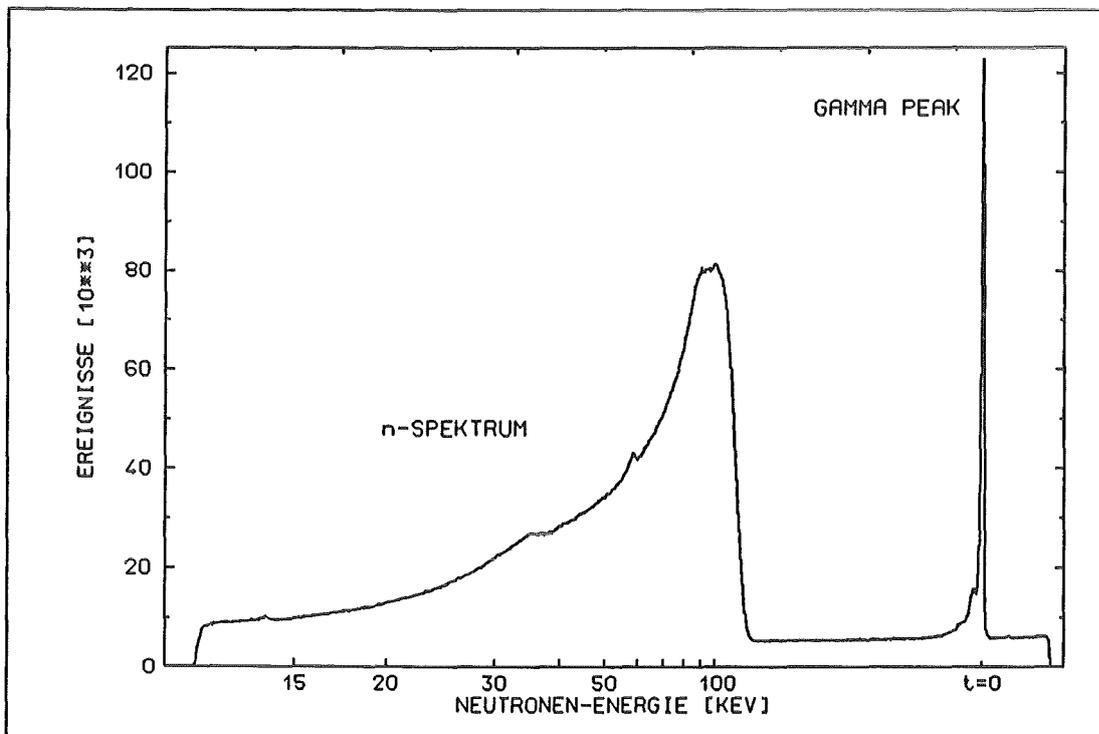


Abb. 4.1: Typisches Flugzeitspektrum der Neutronen. Die γ -Linie aus der neutronenerzeugenden Reaktion markiert den Zeitnullpunkt.

5. ^{147}Sm , ^{147}Pm : Probenpräparation

Eine Probe, die das β -aktive Nuklid ^{147}Pm enthält, weist immer einen Anteil des Tochternuklids ^{147}Sm auf. Bei einer Bestimmung des Neutroneneinfangquerschnittes $\sigma_{n,\gamma}$ von ^{147}Pm über die Messung der γ -Kaskade aus der Reaktion $^{147}\text{Pm}(n,\gamma)^{148}\text{Pm}$ wird man also auch γ -Kaskaden der (n,γ) -Reaktion an ^{147}Sm registrieren. Um $\sigma_{n,\gamma}$ (^{147}Pm) mit dieser Methode messen zu können, muß somit $\sigma_{n,\gamma}$ (^{147}Sm) bekannt sein. Der Querschnitt wurde mit den Moxon-Rae Detektoren im Rahmen dieser Arbeit und zu Vergleichszwecken mit dem 4π - BaF_2 Detektor [Wis92] bestimmt.

Bei der ^{147}Pm -Probe waren aufgrund ihrer β -Aktivität ($t_{1/2} = 2,626$ Jahre) die Strahlenschutzbestimmungen zu beachten. Ferner sollen die Ereignisse der (n,γ) -Reaktion nicht im Elektronenuntergrund aus dem β -Zerfall des ^{147}Pm verschwinden, Bremsstrahlung eingeschlossen. Zudem muß eine Umhüllung der Probe weitgehend durchsichtig für Neutronen im Energiebereich bis etwa 100 keV und für die γ -Kaskade ($S_n = 5,9$ MeV) sein.

Bei allen genannten Meßmethoden werden immer die Zählratenverhältnisse zu einem Referenzpräparat - ^{197}Au - und somit das Verhältnis $\sigma_{n,\gamma}(i)/\sigma_{n,\gamma}(^{197}\text{Au})$ gemessen [Rat88]. Geeignete Goldproben sind also ebenfalls anzufertigen. Darüber hinaus wird mit geeigneten Streuproben der Untergrund gemessen, der durch Neutronen entsteht, die in der Probe gestreut werden und im Detektor beziehungsweise in dessen Umgebung (n,γ) -Einfänge machen und somit registriert werden.

5.1 Samariumprobe

Ausgangsmaterial ist Sm_2O_3 mit einem Anteil von 98,3% ^{147}Sm (0,9% ^{148}Sm , 0,4% ^{149}Sm , Hersteller: ORNL). Die Anwesenheit von ^{160}O ist bei einem $\sigma_{n,\gamma}$ -Querschnitt von 0,2 μbarn [All71] irrelevant, da für $\langle\sigma_{n,\gamma}(^{147}\text{Sm})\rangle$ ein Wert um 1 barn erwartet wird [Bao87]. Zu beachten ist, daß in der Probe gestreute Neutronen den Untergrund bei Messungen der γ -Kaskade erhöhen und hintere Probenschichten geringfügig vom n-Fluß abgeschirmt werden. Dieser Forderung nach einer dünnen Probe stehen eine ausreichende Zählrate und die mechanische Stabilität entgegen. Ferner muß eine gepreßte Proben-tablette bei ca. 1000° C ausgeheizt werden, um absorbiertes Wasser zu entfernen [Gub90, Miz89]. Die Probe wird zwischen zwei gespannte Kaptonfolien fixiert (Tab.5.1).

5.2 Radioaktive Promethiumprobe

Das Probenmaterial weist folgende Charakteristika auf: [Led78, Sch68, Wei69, Bab74, Con71]:

Material:	^{147}Pm , $t_{1/2} = 2,626$ a
chemische Form:	$\text{Pm}_2\text{O}_3 + \text{Sm}_2\text{O}_3$ (^{147}Sm)
Anreicherung:	72%
spez. Aktivität:	576 Ci/g zur Zeit der Messung
Dichte:	6,8.....7,6 g/cm
Aktivität:	β^- (223 keV, 100%)
	γ (121 keV, $2,85 \cdot 10^{-5}$)
	γ (45,2 keV K-Elektronen, $8 \cdot 10^{-5}$)
	γ (interne Bremsstrahlung)

• Abschirmung der Elektronen - Strahlenschutz

Elektronen eines β -Spektrums mit der Endpunktenergie von 223 KeV haben in Luft eine Reichweite von bis zu 50 cm [ICR84]. Sie sollten schon aus Strahlenschutzgründen abgeschirmt werden. Darüber hinaus muß die Pm-Probe wie die Sm-Probe auf einer möglichst dünnen Trägerfolie im Neutronenstrahl fixiert werden. Solche Folien werden jedoch von Elektronen mit den hier gegebenen Energien über kurz oder lang perforiert.

Bei der Präparation der Probe in einer Handschuhbox ist aufgrund der Reichweite der Elektronen in Kunststoffen von etwa 0,5 mm bei geeigneter Dicke der Handschuhe ein Schutz gegeben.

Für die Verpackung des Promethium bietet sich Blei an. Eine Folie von 0,1 mm stoppt die Elektronen vollständig. Strahlenschutztechnische Betrachtungen haben dann der Bremsstrahlung und der damit verbundenen γ -Dosimetrie zu gelten. Bremsstrahlung entsteht am umgebenden Material, also beispielsweise auch bei der Präparation an Luft. Ferner ist die interne Bremsstrahlung des ^{147}Pm zu nennen [Bab74]. Darüber hinaus weist ^{147}Pm charakteristische γ -Linien auf (siehe oben).

Maßgebend für die Dosisleistung ist die im Gewebe deponierte Energie. Unter Berücksichtigung der β -Spektren und der Bremsstrahlungsausbeute können die im Rahmen des Verfahrens zur Umgangsgenehmigung notwendigen Dosisabschätzungen gegeben werden [Dim72, ICR84, NBS52, Lan50]. Das an Blei entstehende Bremsstrahlungsspektrum ist wegen des Verlaufs der Nachweiswahrscheinlichkeit der Moxon-Rae Detektoren unproblematisch (Kap. 6), spielt aber bei der Messung der erzeugten ^{148}Pm -Aktivität mit einem γ -Detektor im Rahmen der Aktivierungsmethode eine wichtige Rolle (Kap.7).

Der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von ^{208}Pb liegt um drei Größenordnungen unter dem des Probenmaterials. Das Verhältnis der (n, γ) -Ereignisraten $N_{n, \gamma}$ ist ausreichend groß:

$$\frac{N_{n,\gamma}(^{147}\text{Pm})}{N_{n,\gamma}(^{208}\text{Pb})} = \frac{\langle\sigma_{n,\gamma}\rangle_{\text{Pm}} \cdot N_{\text{Pm}}}{\langle\sigma_{n,\gamma}\rangle_{\text{Pb}} \cdot N_{\text{Pb}}} = 21 ; \quad (5.1)$$

wobei $\langle\sigma_{n,\gamma}\rangle_{\text{Pm}} = 500 \text{ mbarn}$ (s. Kap.7)
 $\langle\sigma_{n,\gamma}\rangle_{\text{Pb}} = 0,36 \text{ mbarn}$ [Ratz88]

$$N_{\text{Pm}} = \frac{t_{1/2}}{\ln 2} A , \quad A = 2,15 \text{ Ci (s. Kap.7)} , \quad m_{\text{Pb}} = 0,2 \text{ g (s. Tab. 5.1)}$$

Die Transmission $T_n(E_n)$ für den n-Fluß $\Phi_n(E_n)$ ergibt sich nach

$$d\Phi_n(E_n) = \lambda_n(E_n) \cdot \Phi_n(E_n) \cdot dx$$

zu

$$T_n(E_n) \equiv \frac{\Phi_n(d, E_n)}{\Phi_n(0, E_n)} = e^{-\lambda_n(E_n) \cdot d} \quad (5.2)$$

wobei $\lambda_n \cdot d = \sigma_{n,\text{tot}}(E_n) \cdot \rho_N(\text{Pb})$, $d = 0,1 \text{ mm}$
 λ_n : Reaktionswahrscheinlichkeit
 ρ_N : Flächendichte (Tab. 5.1)
 $\sigma_{n,\text{tot}}(E_n) \approx 10 \text{ barn}$ [Lan88]

Die Transmission für Neutronen durch 0,1 mm iostopenreines Blei ist danach besser als 99,8%. Verunreinigungen des ^{208}Pb liegen laut Herstellerangaben unter 0,1% (ORNL).

- ^{208}Pb -Verpackung

Das pulvrige Pm_2O_3 -Material wird in einer Handschuhbox in ein 'Sandwich' aus zwei Bleifolien und Bleidistanzringen geschichtet (Abb.5.1). Diese Bleidose wird anschließend an den Rändern durch eine Presse kaltverschweißt und mit einem dünnen Klebstoffring auf einer Trestaphan-Trägerfolie fixiert. Eine solche Dose ohne Inhalt wurde zur Feststellung des durch sie erzeugten Untergrundes im Meßzyklus mit der Pm-Probe ebenfalls dem n-Fluß ausgesetzt.

Der gesetzlich vorgeschriebene Nachweis der Dichtigkeit einer solchen Verpackung radioaktiven Materials wurde mit einer baugleichen Probe aus natürlichem Blei erbracht, die ^{197}Au -Pulver statt Promethium enthielt. Diese Probe wurde am Heidelberger Forschungszentrum des DKFZ bei einem thermischen Neutronenfluß von $10^{13} \text{ n} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ aktiviert und anschließend 24 h in eine Spüllösung gelegt. Die Bestrahlungszeit von 8 Minuten und die damit erzeugte Aktivität von etwa 5 mCi ist dabei der nachweislich zu unterschrei-

tenden Leckrate der eigentlichen Pm-Probe und den meßtechnischen Möglichkeiten der prüfenden Stelle angepaßt. In der Spüllösung konnte keine ^{198}Au -Aktivität nachgewiesen werden [Dil90].

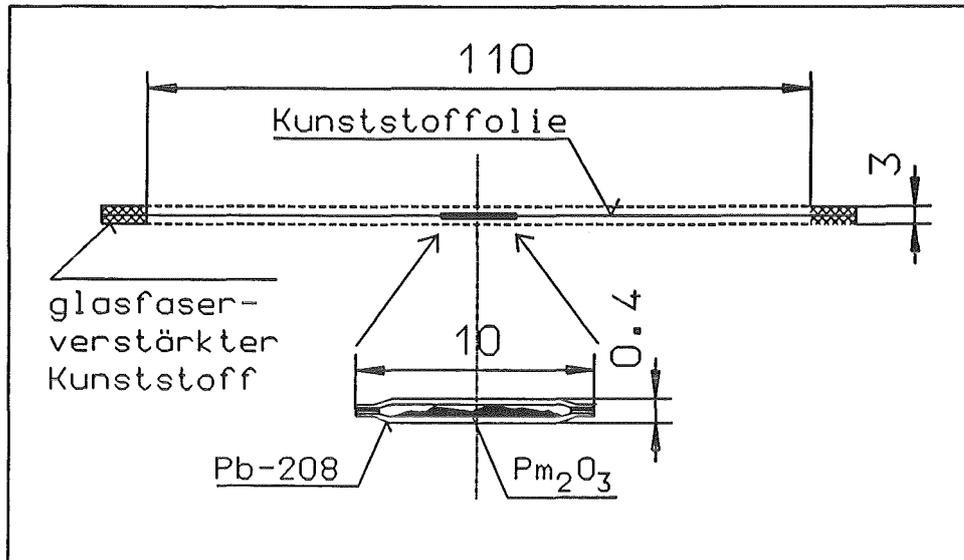


Abb. 5.1: Aufbau der radioaktiven ^{147}Pm -Probe (2 Ci).

• ^{147}Pm

Bei dem verwendeten Promethium handelt es sich um Reaktor-material (Spaltprodukt von ^{235}U). Eine plasma-massen-spektroskopische Analyse (ICP-MS) am Europäischen Institut für Transurane in Karlsruhe ergab, daß Verunreinigungen vernachlässigt werden können: ^{23}Na 0,5 ppm, ^{138}Ba 0,1 ppm, ^{140}Ce + ^{142}Ce 0,5 ppm [Alo91].

Das Pm_2O_3 -Pulver wurde ebenfalls wegen der Absorption von Wasser schon beim Hersteller (Amersham-Buchler) erhitzt.

Im Rahmen der Umgangsgenehmigung für radioaktive Stoffe war im Hause eine Gesamtaktivität von maximal 5 Ci für ^{147}Pm gegeben. Die beabsichtigten Messungen sind im Prinzip mit dieser Menge des Ausgangsmaterials durchführbar. Schätzt man vorsichtig den Querschnitt $\langle\sigma_{n,\gamma}\rangle$ auf 0,5 barn (die Hälfte des bisher angenommenen Werte [Bao87] mit je 0,25 barn in den Grundzustand ^{148}Pm beziehungsweise den angeregten Zustand ^{148m}Pm und geht davon aus, daß letztlich 2,5 Ci der zur Verfügung stehenden 5 Ci in der fertigen Probe vorhanden seien, kann eine konservative Abschätzung der zu erwartenden Zählraten angegeben werden. Ausgehend von einer Neutronenquellstärke $\Phi_{n,0} = 1 \cdot 10^9 \text{s}^{-1}$ [Neu91] und einer Nachweiswahrscheinlichkeit der Moxon-Rae Detektoren $\epsilon_{\text{MR}} \approx 1 \cdot 10^{-3}$ [Jaa90] ist die Zählrate

$$Z_{MR} = \sigma_{n,\gamma} \cdot N \cdot \Phi_n \cdot \epsilon_{MR} \approx 1 \text{ s}^{-1} . \quad (5.3)$$

Eine vorausgegangene $\sigma_{n,\gamma}$ -Messung von ^{209}Bi hatte gezeigt, daß diese Ereignisrate ausreichend ist [Jaa90].

Bei der Aktivierung von ^{147}Pm kann die erzeugte Menge des Folgekerns ^{148}Pm bestimmt werden nach

$$N_{148}(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot N_{147}(0) \cdot (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) , \quad (5.4)$$

$$\begin{aligned} \text{wobei } \lambda_1 &= \Phi_n \cdot \sigma_{147}, \\ \lambda_2 &= \ln 2 / t_{1/2}(148) + \Phi_n \sigma_{148} \\ \sigma_{148} &= 2 \text{ barn [Bao87]}. \end{aligned}$$

Mit der γ -Nachweiswahrscheinlichkeit $\epsilon_{\text{HPGe}} \approx 1 \cdot 10^{-3}$ [Tep91] ist für beide Zustände des Folgekerns, ^{148}Pm und $^{148\text{m}}\text{Pm}$, bei der Auszählung der erzeugten Aktivität eine Rate von mehr als 1 pro Minute zu erwarten. Die beim Zerfall von $^{148\text{(m)}}\text{Pm}$ emittierte Photonen liegen mit $E_\gamma = 914..1465 \text{ keV}$ in einem relativ untergrundfreien Bereich eines γ -Spektrums.

5.3 Sonstige Proben

Weiterhin werden Referenzproben aus ^{197}Au benötigt [Rat88]. Sie liefern den Vergleichsquerschnitt (siehe folgende Kapitel).

Schließlich sind noch Streuproben zu erwähnen, mit denen der Untergrund gemessen wird, der durch Neutronenstreuung in der Sm-beziehungsweise Pm-Probe entsteht. Verwendung finden Wismutoxid und ^{208}Pb (Bi_2O_3 : $\langle \sigma \rangle_{n,\gamma} \approx 2 \text{ mbarn}$, ^{208}Pb : $\langle \sigma \rangle_{n,\gamma} = 0,36 \text{ mbarn}$ bei $kT = 30 \text{ keV}$ [Ratz88, Jaa90]). Bedingt durch die geringen $\langle \sigma \rangle_{n,\gamma}$ -Werte sind die n,γ -Einfangereignisse in den Streuproben vernachlässigbar.

Tab.5.1 gibt abschließend einen Überblick über die verwendeten Proben.

Tab 5.1 Zusammenstellung der Proben

Moxon-Rae: ^{147}Sm Trägerfolie: Kapton

		Masse [g]	Durchmesser [mm]	Dicke [mm]	Foliendicke
Probe	$^{147}\text{Sm}_2\text{O}_3$	0,47407	10	1,6	$2 \times 10 \mu\text{m}$
Streuprobe	$^{209}\text{Bi}_2\text{O}_3$	0,93988	10	1,6	$2 \times 10 \mu\text{m}$
Referenzprobe	^{197}Au	0,15291	10	0,1	$2 \times 10 \mu\text{m}$
Streuprobe	^{208}Pb	0,07847	10	0,1	$2 \times 10 \mu\text{m}$
Leerprobe	-	-	-	-	$2 \times 10 \mu\text{m}$

Moxon-Rae: ^{147}Pm (Anreicherung 72% ^{147}Pm + 38% ^{147}Sm) Trägerfolie: Trestaphan

		Masse [g]	Durchmesser [mm]	Dicke [mm]	Foliendicke
Probe	$^{147}\text{Pm}_2\text{O}_3$	2,15 Ci*	8	0,1..0,2	$2 \times 5 \mu\text{m}$
Bleidose	^{208}Pb	0,19543	10	0,2	$2 \times 5 \mu\text{m}$
Referenzprobe	^{197}Au	0,09669	8	0,1	$2 \times 5 \mu\text{m}$
Streuprobe	^{208}Pb	0,05108	8	0,1	$2 \times 5 \mu\text{m}$
Leerprobe	-	-	-	-	$2 \times 5 \mu\text{m}$

Aktivierung : ^{147}Pm (Anreicherung 72% ^{147}Pm + 38% ^{147}Sm)
Trägerfolie: Trestaphan

		Masse [g]	Durchmesser [mm]	Dicke [mm]	Foliendicke
Probe	$^{147}\text{Pm}_2\text{O}_3$	2,15 Ci*	8	0,1..0,2	$2 \times 5 \mu\text{m}$
Referenz 1	^{197}Au	0,02804	8	0,025	$5 \mu\text{m}$
Referenz 2	^{197}Au	0,02782	8	0,025	$5 \mu\text{m}$

*: Ergebnis der Probenmengenmessung (Kap.7.4)

Trestaphan: CH_2 ; $5 \mu\text{m}$, $0,6 \text{ mg/cm}^2$

Kapton: $\text{C}_{12}\text{O}_5\text{N}_2\text{H}_{10}$; $10 \mu\text{m}$, $1,3 \text{ mg/cm}^2$

6. $^{147}\text{Sm}(n,\gamma)^{148}\text{Sm}$: Messung der γ -Kaskade

Die γ -Strahlung, die der angeregte ^{148}Sm -Kern nach seiner Entstehung in der (n,γ) -Reaktion beim Übergang in den Grundzustand emittiert, wird von Moxon-Rae Detektoren registriert. Mit der Erfassung der Flugzeit der beteiligten Neutronen kann eine neutronenenergieabhängige (n,γ) -Ereignisrate bestimmt werden. Wird diese Rate unter gleichen Bedingungen an einem Referenzmaterial bestimmt (^{197}Au), kann durch Vergleich $\sigma_{n,\gamma}(E_n)$ der Proben gemessen werden.

6.1 Die Messung

Die Detektoren und der Meßaufbau sind an anderer Stelle ausführlich beschrieben [Jaa90], deshalb sei hier nur ein kurzer Überblick gegeben. In einem Konverter werden von den hochenergetischen Photonen der Kaskade (Summenenergie $S_n = 8,14$ MeV, mittlere Multiplizität $\langle M \rangle = 3 \dots 4$) Elektronen erzeugt, die im folgenden Plastikszintillator sichtbares Licht freisetzen. Ein Photomultiplier weist diese nach. Es stehen drei solche Detektoren mit unterschiedlichen Konvertern zur Verfügung (Bi_2O_3 , C, 88,6% Bi_2O_3 + 11,4% C; $\varnothing = 5$ cm, Dicke 0,6 - 2 cm). Die Zeitauflösung

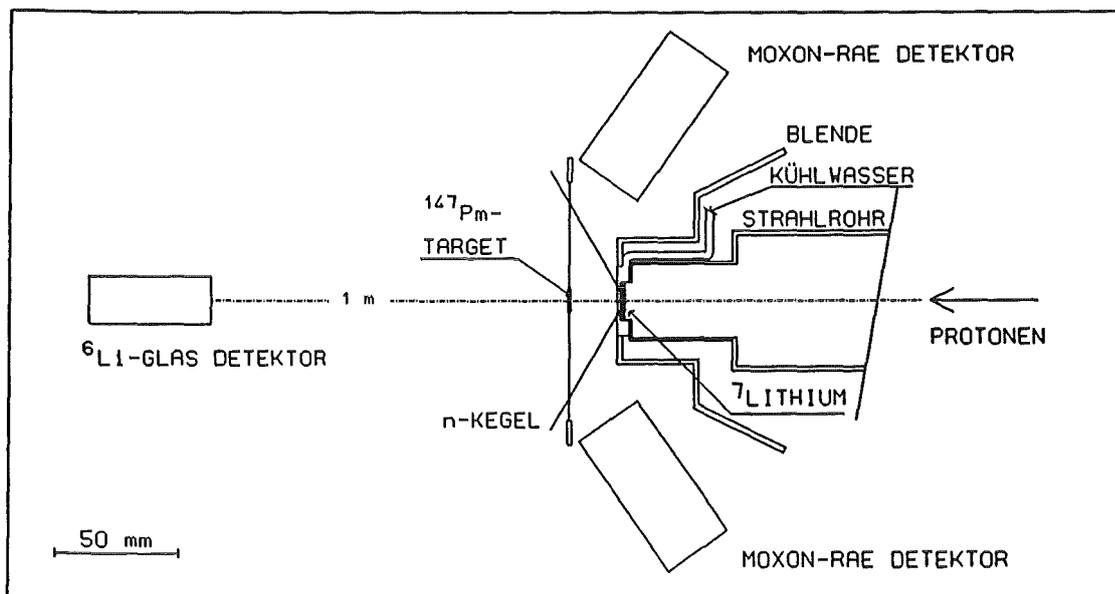


Abb. 6.1: Aufbau der Moxon-Rae-Messung. Die MR-Detektoren stehen außerhalb des n-Kegels etwa 6 cm vom Target entfernt.

liegt bei 600ps. Die Detektoren beobachten die Probe aus etwa 6 cm Abstand aus einer Position außerhalb des Neutronenkegels (120° in Vorwärtsrichtung). Ihr schnelles Ausgangssignal startet einen Zeit-zu-Pulshöhenkonverter (TPC). Ein 'Pick-up' am Strahlrohr, der die Protonen für den folgenden Neutronenpuls registriert, liefert das Stoppsignal.

Das Energiespektrum der Neutronen, die die Probe ungestört passieren, wird etwa 1 m nach dem ^7Li -Target aufgenommen (^6Li -Glas Detektor, Abb. 6.1).

Die fünf Proben einer Messung (Kap. 5) wurden dem Neutronenstrahl zyklisch je etwa 5 Minuten ausgesetzt; hundert solcher Zyklen waren im vorliegenden Fall für eine komplette Messung ausreichend. Die Abbildung 6.2 zeigt ein typisches, unbearbeitetes Moxon-Rae-Spektrum ('MR'-Spektrum). In diesem Spektrum fällt neben den Einfangereignissen der sogenannte ' γ -Peak' auf. In ihm erscheinen die Photonen aus der $^7\text{Li}(n,\gamma)^8\text{Be}$ -Reaktion. Sie markieren die Startzeit der Neutronen auf ihrem Weg zur Probe. Der Abstand der Probenmitte vom ^7Li beträgt 20,2 mm.

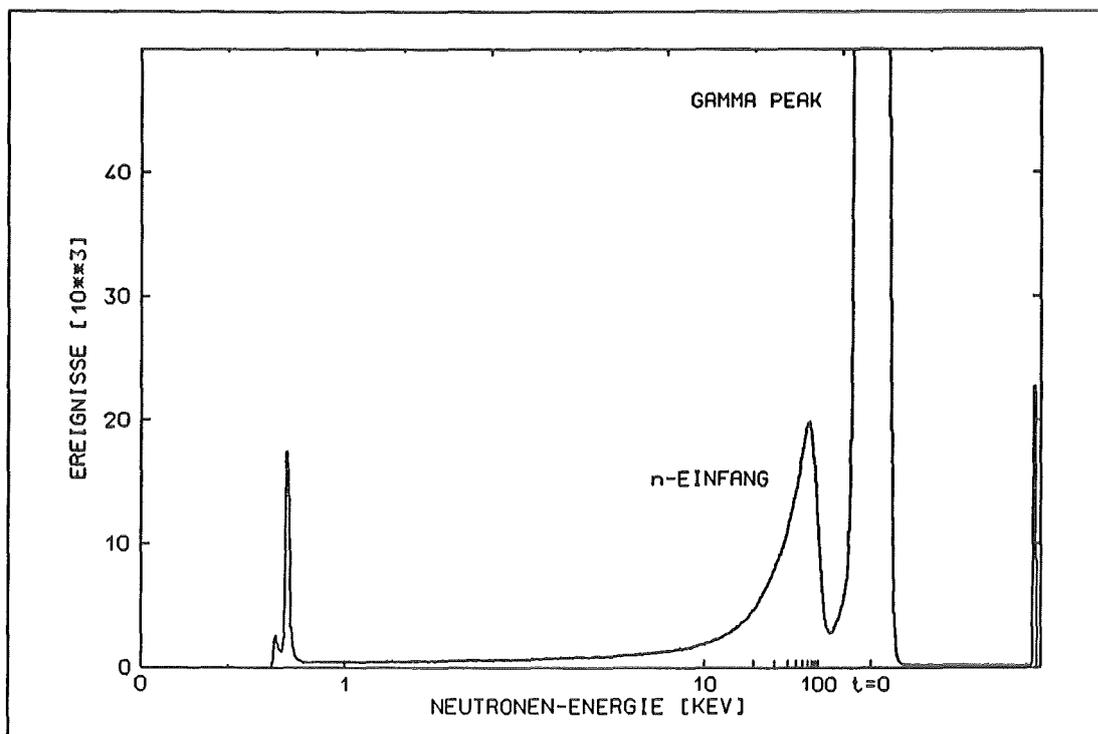


Abb. 6.2: Neutronenenergiespektrum der mit Moxon-Rae-Detektoren beobachteten n,γ -Reaktion.

6.2 Die Auswertung der Zählraten

In einer einleitenden Phase der Auswertung wurden die individuellen Spektren der einzelnen Proben auf gleichen Neutronenfluß angeglichen. Weiterhin waren die Proben- und Streuspektren

aufeinander abzustimmen.

- Zuerst wurden die etwa 100 Spektren je Probe summiert, die in jedem einzelnen Zyklus aufgezeichnet wurden. Dabei wurden durch das exakte Übereinanderlegen der Position der γ -Linien eventuelle Langzeitveränderungen der Elektronik ausgeglichen und somit die Zeitauflösung verbessert.
- Von den n-Spektren aller Proben wurde ein Untergrundsockel aus unkorrelierten Ereignissen subtrahiert. Dieser Untergrund ergab sich durch Mittelung der Zählraten einiger Kanäle, deren zugehörige Flugzeit unmittelbar vor dem Eintreffen eines neuen n-Pulses liegt (also die Position im n-Spektrum zwischen γ - und n-Peak).
- Der n-Fluß wird durch die unterschiedlichen Transmissionen der einzelnen Proben verschieden geschwächt. Dieser Einfluß auf die n-Spektren wurde mit Hilfe des Transmissionsfaktors $T_n(E_n)$ nach Gleichung 5.2 für jede Neutronenflugzeit (also Energie) korrigiert. Die notwendigen $\sigma_{n,tot}(E_n)$ -Werte sind entweder [Lan88] entnommen oder stammen im Falle von ^{147}Sm aus Messungen im Hause [Wis92]. Die Trägerfolie wurde berücksichtigt.
- Mit Hilfe der korrigierten n-Spektren konnten Unterschiede im Neutronenfluß für die einzelnen Proben von unter 1% festgestellt werden. Die MR-Spektren der Proben erhielten einen entsprechenden Korrekturfaktor.
- Die verwendeten Streuproben stimmen in ihren Abmessungen mit der ^{147}Sm - beziehungsweise ^{197}Au -Probe überein. Die Streurrate selbst muß wegen der zur Probe verschiedenen Zahl der Streuzentren und der verschiedenen Streuquerschnitte korrigiert werden. Geht man davon aus, daß zu $\sigma_{n,tot}$ im untersuchten Energiebereich im wesentlichen die Neutronenstreuung beiträgt, ist der oben verwendete Transmissionsfaktor ein Maß für die Streuwahrscheinlichkeit $(1-T_n)$. Mit den Transmissionen des jeweiligen Probenmaterials konnte somit für jede Neutronenenergie eine Korrektur f_s auf die MR-Streuspektren nach Abzug des Leerspektrums angewendet werden.

$$f_s(E_n) = \frac{1-T_{Probe}(E_n)}{1-T_{Streu}(E_n)} \quad (6.1)$$

Hierbei muß ein Fehler in f_s von 10% angenommen werden (Quotient kleiner Differenzen!). Nach dieser Vorbehandlung

ergibt sich für jede Neutronenenergie eine Nettozählrate der (n, γ) -Einfangereignisse.

$$Z(E_n) = N_P(E_n) - N_L(E_n) - f_S(E_n) \cdot [N_S(E_n) - N_L(E_n)] , \quad (6.2)$$

wobei P \triangleq Probe
L \triangleq Leerprobe
S \triangleq Streuprobe

und für einen bestimmten Energiebereich ΔE_n zu

$$Z(E_n, E_n + \Delta E_n) = \sum_{E_n}^{E_n + \Delta E_n} Z(E_n) \quad (6.3)$$

Der Fehler der Nettozählrate ergibt sich zu

$$dZ = [N_P + N_L + \Delta f_S^2 (N_S - N_L)^2 + f_S^2 (N_S + N_L)]^{1/2} \quad (6.4)$$

Auf diese Zählrate müssen nun weitere Korrekturen angewendet werden, die keinen Bezug zu individuellen n-Energien haben (γ -Kaskade) oder nur schwer auf diese zurückzuführen sind (n-Selbstabschirmung und n-Mehrfachstreuung in der Probe).

- Ausgehend von der vereinfachenden Annahme daß der γ -Fluß exponentiell mit der Dicke eines Absorbers abnimmt und daß der Absorber selbst die Strahlungsquelle ist, kann ein Schwächungsfaktor angegeben werden [Wis84]:

$$k_{SA} = \frac{1}{\mu(E_\gamma) \cdot d_{eff}} (1 - e^{-\mu(E_\gamma) \cdot d_{eff}}) \quad (6.5)$$

wobei $\mu(E_\gamma) = N_L \cdot \rho_{\gamma, tot}(E_\gamma) / M_{mol}$
 ρ = Absorberdichte
 $d_{eff} = d_{Probe} / (2 \sin \varphi)$
 φ = Detektorwinkel zur Strahlachse

Mit dem Spektrum $K(E_\gamma)$ der γ -Kaskade [Ref91] und der Nachweiswahrscheinlichkeit $\epsilon_{MR}(E_\gamma)$ der MR-Detektoren ist die Korrektur der Zählrate

$$f_{SA} = \frac{\int k_{SA}(E_\gamma) \cdot \epsilon_{MR}(E_\gamma) \cdot K(E_\gamma) \cdot dE_\gamma}{\int \epsilon_{MR}(E_\gamma) \cdot K(E_\gamma) \cdot dE_\gamma} \quad (6.6)$$

$$= 0,997 \text{ für } ^{197}\text{Au}$$

$$= 0,992 \text{ für } ^{147}\text{Sm}$$

Der größte Fehler liegt hierbei im γ -Spektrum. Seine Aus-

wirkung wurde durch die Berücksichtigung verschiedener im Rahmen der Fehler möglicher Spektren getestet.

- In erster Näherung ist die Nachweiswahrscheinlichkeit der MR-Detektoren proportional zur γ -Energie. Für eine Kaskade $\gamma_1 + \gamma_2 + \dots + \gamma_i$ gilt

$$\epsilon_{MR} = \sum_i a_{MR} E_{\gamma_i} = a_{MR} S_n, \quad \text{wobei } \sum_i E_{\gamma_i} = S_n \quad (6.7)$$

Da Zählraten mit denen einer Referenzprobe verglichen werden sollen, ist zu beachten, daß die γ -Spektren von Probe und Referenz nicht gleich sind. Bei einer Korrektur muß auch wieder die Absorption in der Probe bedacht werden:

$$f_{\epsilon-MR} = \frac{\int \epsilon_{MR}(E_\gamma) \cdot k_{SA}(E_\gamma) \cdot K(E_\gamma) dE_\gamma}{\int a_{MR} \cdot E_\gamma \cdot k_{SA}(E_\gamma) \cdot K(E_\gamma) dE_\gamma}; \quad (6.8)$$

Dabei ist $\epsilon_{MR}(E_\gamma)$ der gemessene Verlauf der Nachweiswahrscheinlichkeit [Jaa90]. Der Vergleich zur Referenzprobe zeigt die Größe dieser Korrektur:

$$f_{\epsilon-MR}(^{197}\text{Au}) / f_{\epsilon-MR}(^{147}\text{Sm}) = 1,003 \quad (6.9)$$

Zum Fehler von $f_{\epsilon-MR}$ trägt auch hier im wesentlichen die γ -Kaskade bei.

- Die Auswirkung der Mehrfachstreuung der Neutronen in der Probe auf die Zählrate wird durch eine Monte-Carlo Simulation festgestellt (Programm SESH, [Frö68]). Dieses Programm ermittelt die Auswirkung zweier gegenläufiger Effekte: einerseits wird der Weg der Neutronen durch die Probe durch die Streuung verlängert, andererseits werden eben durch die Streuung hintere Probenschnitte etwas vom n-Fluß abgeschirmt. Die entsprechenden Korrekturfaktoren sind:

$$\begin{aligned} f_{MS}(^{147}\text{Sm}) &= 1,024 \pm 0,002; \\ f_{MS}(^{197}\text{Au}) &= 1,003 \pm 0,002. \end{aligned} \quad (6.10)$$

6.3 Die (n,γ)-Querschnitte

Einschließlich aller Korrekturen ist die Zählrate (5.3) eines Moxon-Rae Detektors:

$$Z_{MR} = \sigma \cdot N \cdot \Phi_n \cdot (f_{e-MR} \cdot a_{MR} \cdot S_n) \cdot f_{SA} \cdot f_{MS} ; \quad (6.11)$$

wobei S_n : Summenenergie der γ -Kaskade.

Mit der Zählrate der Goldreferenz ist der $\sigma_{n,\gamma}(E_n)$ -Querschnitt von ^{147}Sm

$$\sigma_{n,\gamma}^{Sm}(E_n) = \sigma_{n,\gamma}^{Au}(E_n) \cdot \frac{Z_{MR}(E_n, Sm)}{Z_{MR}(E_n, Au)} \cdot \frac{C(Sm)}{C(Au)} , \quad (6.12)$$

$$\text{wobei } C(i) = N(i) \cdot f_{e-MR}(i) \cdot S_n(i) \cdot f_{SA}(i) \cdot f_{MS}(i)$$

Die Anwendung der gesamten Auswertungsprozedur auf sinnvolle Abschnitte der Neutronenenergie ergibt den energieabhängigen Verlauf des Querschnittes. Die Energieabschnitte folgen aus der Position der Probe 20 mm hinter dem ^7Li -Target und dem Proben-durchmesser von 10 mm (Abb. 6.3).

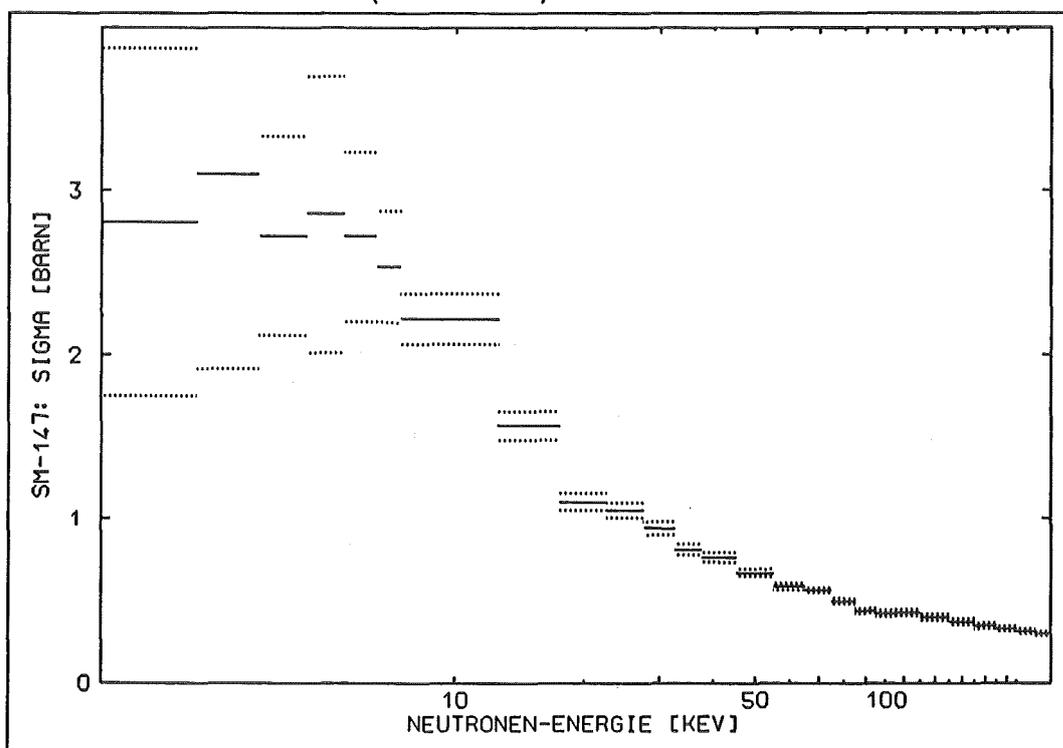


Abb. 6.3: Energieabhängiger Wirkungsquerschnitt $\sigma_{n,\gamma}$ des ^{147}Sm .

Durch Faltung der $\sigma_{n,\gamma}(E_n)$ -Funktion mit der Maxwell-Verteilung des Neutronenflusses (1.1) kann der stellare Neutroneneinfangquerschnitt von ^{147}Sm nach (1.3) bei $kT = 30$ keV bestimmt werden, wobei die Integrale durch Summation über die Energieabschnitte ersetzt werden.

$$\langle \sigma \rangle = \frac{\langle \sigma v \rangle}{v_T} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{S1}{S2} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{\sum_n [\sigma(E_n) \cdot E_n \cdot e^{-E_n/kT} \cdot \Delta E_n]}{\sum_n [E_n \cdot e^{-E_n/kT} \cdot \Delta E_n]} \quad (6.13)$$

wobei $E_n = 2..230$ keV.

Über $E_n = 100$ keV werden die $\sigma_{n,\gamma}(E_n)$ -Werte nach dem $1/v$ -Gesetz extrapoliert. Der Fehler der individuellen $\sigma(E_n)$ -Werte geht in $\langle \sigma \rangle$ ein nach

$$\Delta \langle \sigma \rangle = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{1}{S2} \left[\sum_n (\Delta \sigma_{E_n} \cdot E_n \cdot e^{-E_n/kT} \cdot \Delta E_n)^2 \right]^{1/2} \quad (6.14)$$

Der so bestimmte Querschnitt ist:

$$\langle \sigma \rangle = 933 \text{ mbarn} \pm 14_{\text{Stat.}} \pm 38_{\text{Syst.}} \quad (6.15)$$

Tabelle 6.1: Zusammenstellung der Meßfehler in den Moxon-Rae-Detektoren

Fehlerquelle	Fehler in % im Verhältnis $\sigma(^{147}\text{Sm})/\sigma(^{197}\text{Au})$
Ereignisse Z_{MR}	1,0 - 3,3
Targetkerne N	1,5
Verunreinigungen	1,3
Probendicke d_{eff}	2,0
Neutronenfluß Φ_n	0,6 (einschl. Flugweg)
Kaskadenenergie S_n	0,1
γ -Energieverteilung	5
Streukorrektur $f_s(E_n)$	10
Nachweiswahrsch. ϵ_{MR}	5
Mehrfachstreuung f_{MS}	0,2
Referenzquerschn. σ_{AU}	5
-> Fehler in $\sigma(^{147}\text{Sm})$	6

6.4 Moxon-Rae Detektor und aktive Probe: ^{147}Pm

Die Messung mit der ^{147}Pm -Probe mußte nach 6 Stunden wegen eines Beschleunigerdefektes unterbrochen werden. Nach dessen Reparatur wurden vor der Fortsetzung der Messung am Meßaufbau vereinzelt Kontaminationen festgestellt. Die ^{147}Pm -Messung mit Moxon-Rae Detektoren wurde daraufhin sicherheitshalber abgebrochen, zumal die zuvor durchgeführte Aktivierungsmessung mit derselben Probe bereits eine Querschnittsbestimmung zuließ.

Dennoch konnte der Nachweis erbracht werden, daß mit Moxon-Rae Detektoren (n,γ) -Messungen an einer Probe wie ^{147}Pm durchführbar sind. Das Neutronenspektrum des ^6Li -Glasdetektors und das Flugzeitspektrum der (n,γ) -Ereignisse (Abb. 6.4) zeigen im Vergleich zu den ^{147}Sm -Spektren (Abb. 6.2 und 4.1) keinen zusätzlichen Untergrund. Lediglich die kumulierten Zählraten sind für eine Auswertung zu gering.

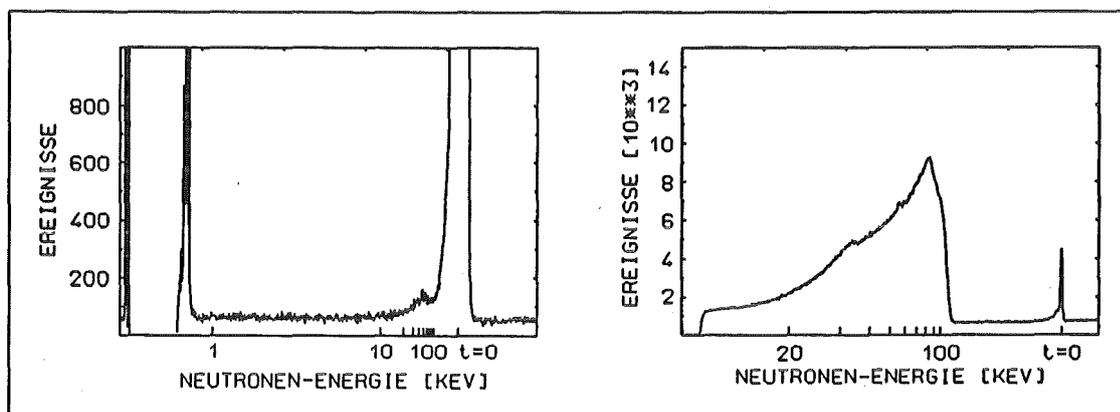


Abb 6.4: Neutronenenergiespektrum der γ,n -Reaktion am ^{147}Pm (links) und zugehöriges Neutronenspektrum zur n-Flußkontrolle (rechts).

Eine mögliche Erklärung für die Kontamination liegt in der verwendeten isotopenreinen ^{208}Pb -Folie. Für die Dichtigkeitstests der Probe am Ersatzmaterial ^{197}Au (Kap.5) wurde Bleifolie in einer natürlichen Isotopenzusammensetzung verwendet. Im Gegensatz zu dieser wies die ^{208}Pb -Folie eventuell kleinste Poren auf, durch die Probenmaterial nach der allmählichen Zerstörung der umhüllenden Trestaphanfolie austreten konnte.

7. $^{147}\text{Pm}(n,\gamma)^{148}\text{Pm}$: Aktivierungsmessung

Als Reaktionsprodukte der (n,γ) -Reaktion entstehen ^{148}Pm und das angeregte Isomer ^{148m}Pm , beide mit Halbwertszeiten von einigen Tagen. Die mit diesen Zerfällen korrelierten γ -Linien können in einem hochreinem Germaniumdetektor (HPGe) nachgewiesen werden. Auch das in einer ^{197}Au -Referenzprobe erzeugte ^{198}Au mit ähnlicher Halbwertszeit kann so gezählt werden. Durch Vergleich der Produktionsraten ist somit ein Vergleich der Reaktionsquerschnitte möglich. Die besondere Problematik bei der Verwendung eines γ -Detektors bei einer β -aktiven Probe ist dessen hohe Empfindlichkeit für die an der Probe entstehende Bremsstrahlung.

7.1 Aktivierungs- und Meßaufbau

Unmittelbar hinter der Neutronenquelle (^7Li -Target) werden die ^{147}Pm -Probe und zwei ^{197}Au -Referenzproben ($d = 25\mu\text{m}$) angebracht [Tep91]. Die Proben sind so dimensioniert, daß sie den gesamten Neutronenkegel abdecken (Bild 7.1). Damit ist das Probenmaterial einem quasi-stellaren Neutronenfluß ausgesetzt (Kap.4). Die Aktivierungszeit betrug etwa 48 Stunden bei einem Fluß von $8 \cdot 10^{-8} \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$. Der Fluß kann mit Hilfe der Goldproben bestimmt werden (Kap.7.3).

Zur Bestimmung der erzeugten ^{148m}Pm - beziehungsweise ^{198}Au -Aktivität über die charakteristischen γ -Linien wurde ein HPGe-Detektor verwendet. Eine Bleiabschirmung von 3 mm zwischen der ^{147}Pm -Probe und dem Detektorkristall war notwendig, um den Bremsstrahlunguntergrund zu reduzieren (Abb. 7.2). Im Interesse gleicher Meßbedingungen wurde diese Abschirmung auch bei der Aktivitätsbestimmung der ^{197}Au -Referenz verwendet. Zudem wurden alle γ -Spektren bei zwei verschiedenen Abständen zum Detektor aufgenommen ($h_1 = 79 \text{ mm}$, $h_2 = 112 \text{ mm}$). Die Abbildung (7.3) zeigt ein solches Spektrum. Es fallen darin auch die γ -Linien des aktiven ^{146}Pm auf ($t_{1/2} = 5,5\text{a}$), das als Verunreinigung in der Probe enthalten war. Die Konzentration lag allerdings unter der Nachweisgrenze von 10 ppb der ICP-MS-Analysemethode (Kap.5).

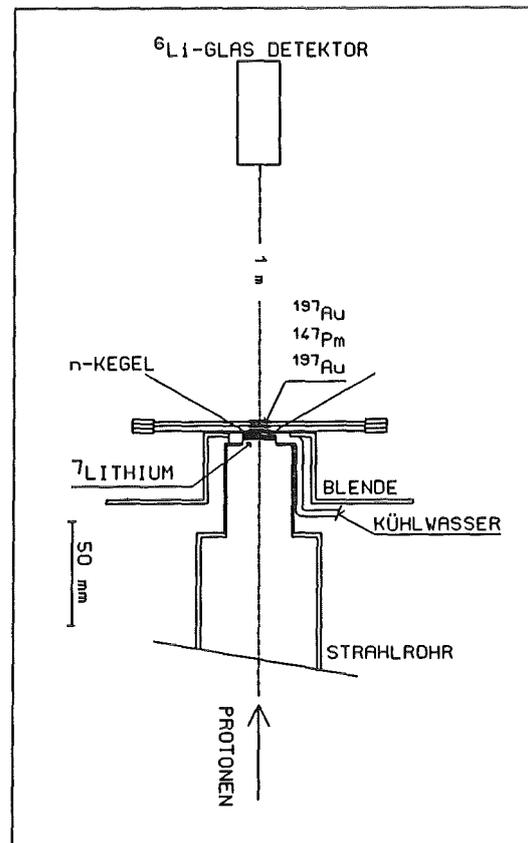


Abb. 7.1: Aufbau der Aktivierungsmessung am ^{147}Pm .

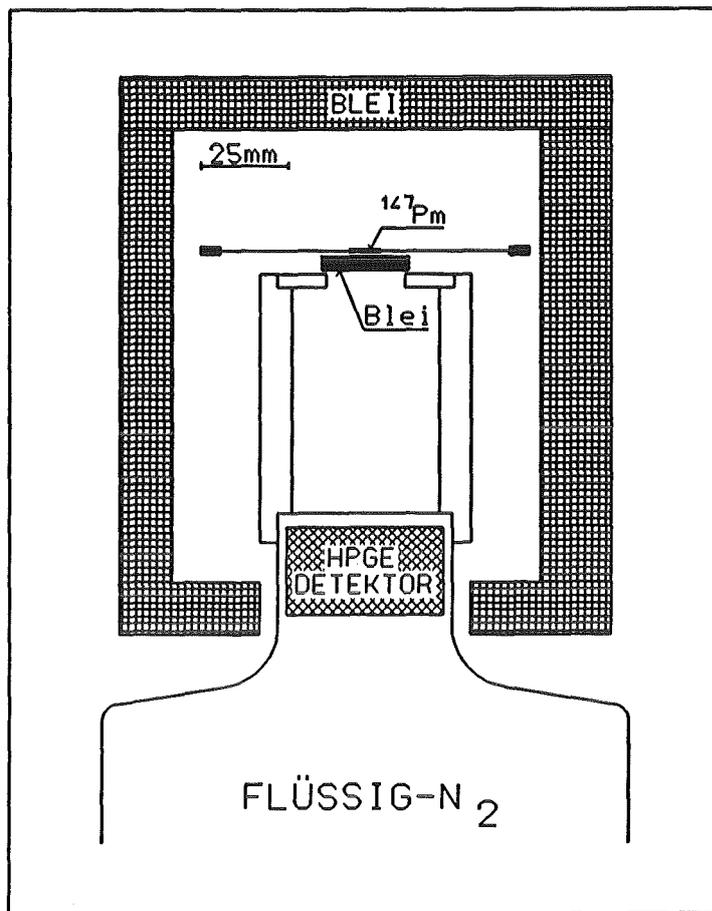


Abb. 7.2: Position der ^{147}Pm -Probe und der Bleiabschirmung gegen die Bremsstrahlung der Probe am HPGe-Detektor.

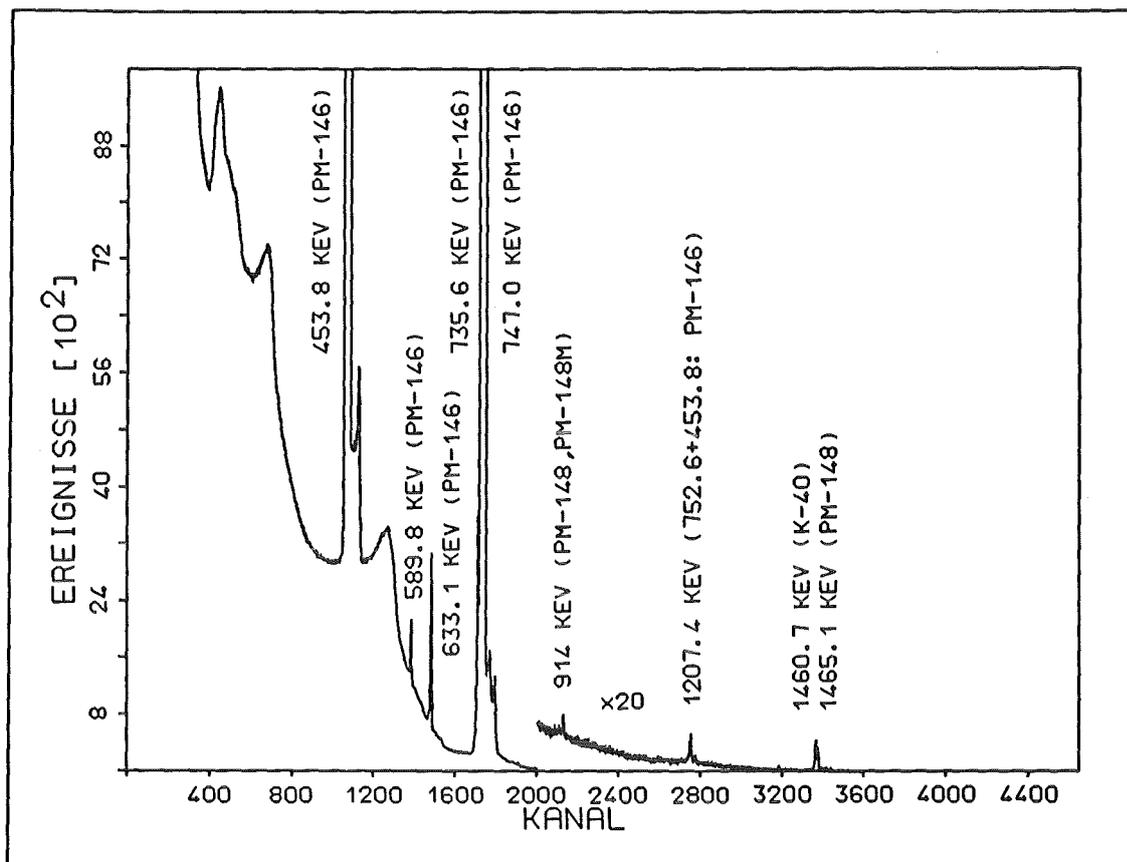


Abb. 7.3: HPGe-Spektrum der γ -Aktivität der bestrahlten ^{147}Pm -Probe.

7.2 Nachweiswahrscheinlichkeit

Die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors selbst - ohne Bleiabschirmung - als Funktion der γ -Energie ist bekannt [Tep91, Rat88]. Die dort angegebenen Werte ϵ_{Tep} gelten allerdings für andere Abstände zwischen Detektor und Probe. Sie müssen also durch Korrekturen angepaßt werden:

$$\epsilon(E_\gamma, h) = f_\omega(h) \cdot f_{\text{Rand}}(E_\gamma, h) \cdot f_{\text{Blei}}(E_\gamma, d) \cdot \epsilon_{\text{Tep}}(E_\gamma) \quad (7.1)$$

wobei h : Abstand Probe-Detektor
 d : Dicke der Bleiabschirmung
 und $\ln(\epsilon_{\text{Tep}}(E_\gamma)) = 1,975 - 1,29 \ln(E_\gamma)$

Die einzelnen Faktoren f_i bedeuten:

- $f_\omega(h)$: Mit zunehmendem Abstand verringert sich der Raumwinkelanteil, den der Detektor von der isotrop emittierten γ -Strahlung der aktivierten Probe sieht. f_ω ist nur von der

gegebenen Geometrie abhängig.

- $f_{\text{Rand}}(E_\gamma, h)$: Einem Photon, das den zylindrischen Detektor im Randbereich trifft, steht nur eine verkürzte Detektorlänge für eine Wechselwirkung zur Verfügung. Aus geometrischen Gründen ändert sich dieser Bereich mit dem Abstand. Weiterhin hängt die Reichweite der Photonen im Detektor von deren Energie ab. Eine Monte-Carlo Simulation mit Hilfe der maximalen Reichweite von Photonen in Materie [Vei73, Sto70] ergab aufgrund dieses Randeffectes, je nach E_γ , Unterschiede in der Nachweiswahrscheinlichkeit bei den beiden Abständen von bis zu 4%. Vereinfacht wurde eine lineare Abnahme des γ -Flusses im Detektor ($\varnothing = 44,6\text{mm}$, $d = 25,2\text{mm}$) angenommen.
- $f_{\text{Blei}}(E_\gamma, d)$: Bei der Abschwächung des γ -Flusses durch 3 mm Blei handelt es sich nicht mehr nur um einen Randeffect:

$$f_{\text{Blei}}(E_\gamma, d) = e^{-\ln 2 \cdot d \rho / d_{1/2}(E_\gamma)} \quad (7.2)$$

wobei d : Absorberdicke
 ρ : Absorberdichte
 $d_{1/2}$: Halbwertsdicke [g/cm^2] [Sto70]

Eine Fehlerrechnung zu $\epsilon(E_\gamma, h)$ ergibt nun, daß die größte Unsicherheit in der Absorptionskorrektur $f_{\text{Blei}}(E_\gamma, d)$ liegt. Bei der ^{147}Pm -Linie mit $E_\gamma = 121\text{ keV}$ ist das Verhältnis von Absorberdicke zu Halbwertsdicke $d/d_{1/2} \approx 15$. Damit übersteigt der Fehler aufgrund der Tabellen- und Interpolationstoleranz den Wert von f_{Blei} selbst um eine Größenordnung (Größtfehlerabschätzung). Folglich mußte die Nachweiswahrscheinlichkeit des HPGe-Detektors mit Bleiabsorber mit diversen Eichquellen vermessen werden. Verwendung fanden die Eichquellen $^{57,60}\text{Co}$, ^{152}Eu , ^{152}Sm , ^{54}Mn , ^{137}Cs und ^{65}Zn mit γ -Energien von 122 keV bis 1332,5 keV.

Die Nachweiswahrscheinlichkeit ist:

$$e_{\text{exp}} = \frac{c}{t_m \cdot A} \quad (7.3)$$

wobei c : γ -Linienereignisse
 t_m : Meßzeit
 A : Quellenaktivität

Mit der Fehlerabschätzung

$$\Delta e_{\text{exp}} = e_{\text{exp}} \left(\frac{\Delta c}{c} + \frac{\Delta t_m}{t_m} + \frac{\Delta A}{A} \right), \quad (7.4)$$

wobei $\Delta c/c = c^{-1/2}$,
 $\Delta t_m/t_m = 0,01$,
 $\Delta A/A = 0,015$,

ergab sich ein Fehler in ϵ_{exp} von maximal 11%. Dies galt für die Messung bei kurzem Abstand h_1 , da hier besonders bei niedriger γ -Energie das Verhältnis von Nettozählrate zum Untergrund günstiger war als bei größerem Abstand (Abb.7.4).

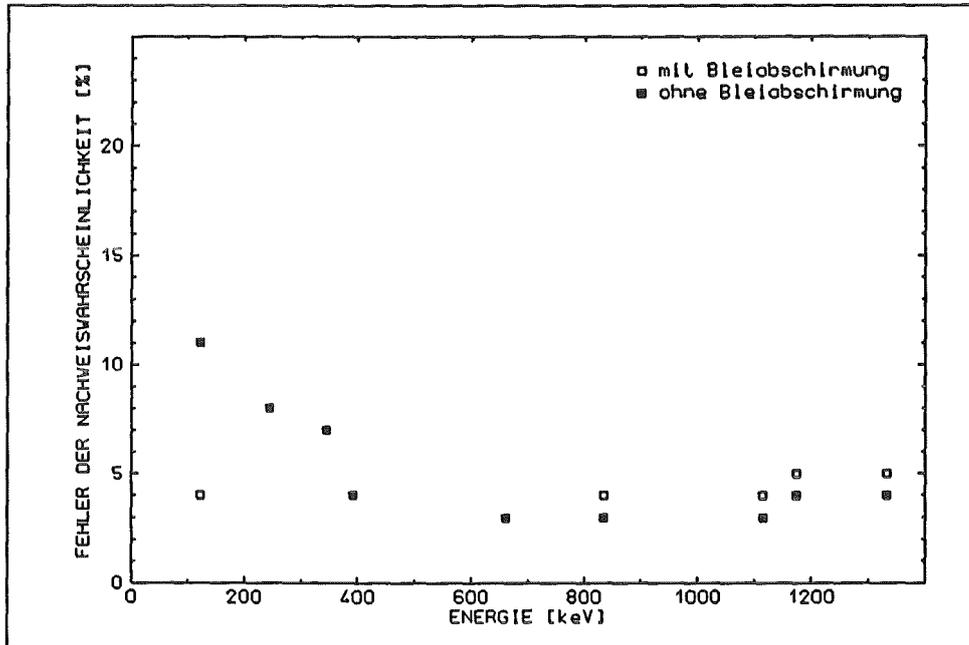


Abb. 7.4: Fehler der gemessenen Nachweiswahrscheinlichkeit des HPGe-Detektors mit Bleiabschirmung ($d=3\text{mm}$) zwischen Probe und Detektor.

Da für die spätere Auswertung der ^{147}Pm -Linie ϵ -Werte interpoliert werden müssen, muß ein funktionaler Zusammenhang $\epsilon_{\text{exp}} = \epsilon_{\text{exp}}(E_\gamma)$ gefunden werden. Dies gelingt, wenn der Ausdruck (7.1) für $\epsilon(E_\gamma, h)$ mit $f_{\text{Blei}}(E_\gamma, d)$ nach (7.2) nach der Halbwertsdicke $d_{1/2} = d_{1/2}(E_\gamma)$ aufgelöst wird und die gemessenen $\epsilon(E_\gamma, h_1)$ eingesetzt werden. Im doppelt-logarithmischen Auftrag (Abb. 7.6) ist zu erkennen, daß die Halbwertsdicke um etwa 400 keV von zwei verschiedenen Geraden genährt werden kann. Die eingetragenen Fehler resultieren aus $\Delta\epsilon_{\text{exp}}$ nach (7.4). Für die Messung der Nachweiswahrscheinlichkeit des HpGe-Detektors mit Bleiabschirmung folgt, daß die tabellierten Werte für $d_{1/2}(E_\gamma)$ ersetzt werden durch

$$d_{1/2}(E_\gamma) = g_{400}(E_\gamma) e^{a_1 + b_1 \cdot \ln E_\gamma} + (1 - g_{400}(E_\gamma)) e^{a_2 + b_2 \cdot \ln E_\gamma}, \quad (7.5)$$

$$\begin{aligned} \text{wobei } a_1 &= -10,7; & b_1 &= 1,98 \\ a_2 &= -8,73; & b_2 &= 1,65. \end{aligned}$$

Der Faktor $g_{400}(E_\gamma)$ bildet den Übergang zwischen den beiden Regressionsgeraden von $d_{1/2}$:

$$g_{400}(E_\gamma) = \frac{1}{1 + (E_\gamma/400)^{10}}, \quad [E_\gamma] = \text{keV} \quad (7.6)$$

Die Abbildung 7.5 zeigt das Ergebnis dieser Anpassung. Die $\epsilon(E_\gamma, h_2)$ -Werte für den größeren Abstand h_2 werden daraus mit Hilfe der Faktoren f_ω und f_{Rand} gewonnen.

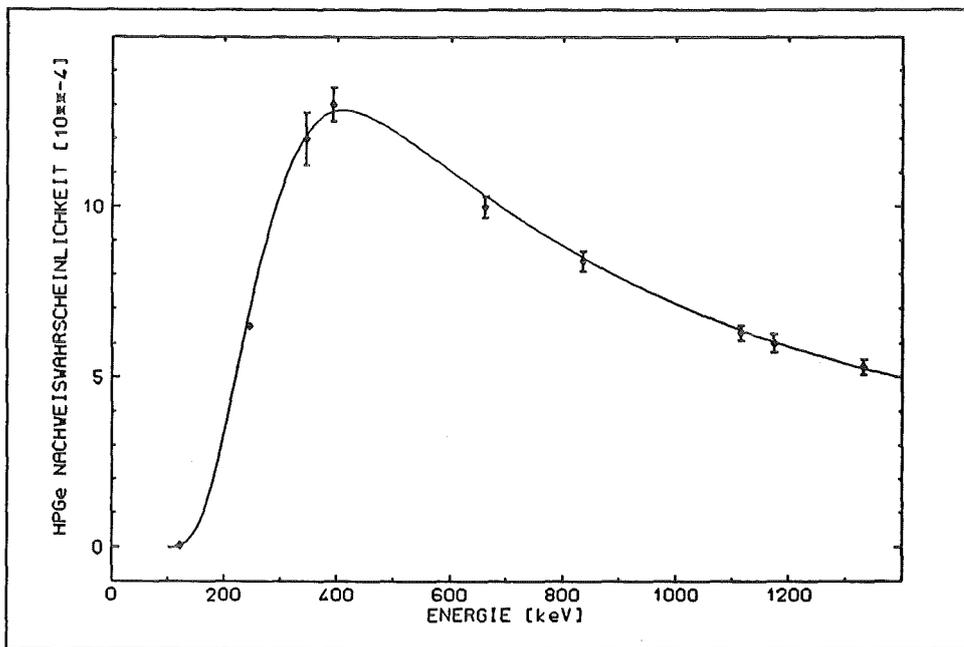


Abb. 7.5: Gemessene Nachweiswahrscheinlichkeit des HPGe-Detektors mit Bleiabschirmung und die über die γ -energieabhängige Halbwertsdicke angepaßte Funktion.

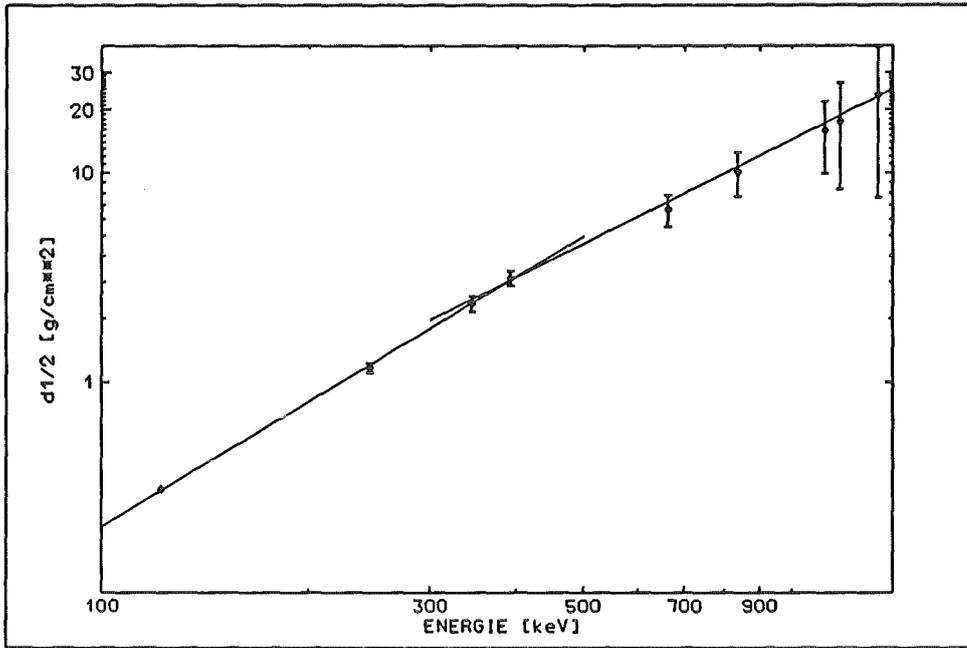


Abb. 7.6: Fit der γ -energieabhängigen Halbwertsdicke der Bleiabschirmung.

7.3 Auswertungsmethode

Mit dem HPGe-Detektor kann über die γ -Linien eines instabilen, während der Aktivierung erzeugten Nuklids die Zahl N_A dieser Kerne festgestellt werden:

$$N_A = \frac{C_A}{f_w \cdot f_m \cdot f_\gamma \cdot \epsilon(E_\gamma, h)} \quad (7.7)$$

wobei C_A : Nettoinhalt der γ -Linien
 f_γ : relative Linienintensität

Der Faktor f_w korrigiert die Abnahme der erzeugten Aktivität in der Wartezeit t_w zwischen Aktivierung und der Aktivitätsbestimmung.

$$f_w = e^{-\lambda_A t_w}, \quad \lambda_A = \ln 2 / t_{1/2} \quad (7.8)$$

Des weiteren wird die Abnahme der Aktivität während der Bestimmung derselben am γ -Detektor korrigiert (Meßzeit t_m):

$$f_m = 1 - e^{-\lambda_A t_m} \quad (7.9)$$

Der Wirkungsquerschnitt für die Erzeugung der Tochterkerne N_A ist dann

$$\sigma = \frac{N_A}{N_T} \cdot \frac{A_T}{\Phi_{n, tot} \cdot f_b}, \quad (7.10)$$

wobei $\Phi_{n, tot}$: integrierter n-Fluß,
 N_T : Anzahl der Targetkerne,
 A_T : Targetfläche.

Der Faktor f_b korrigiert hierbei die Abnahme der Tochterkerne bereits während der Bestrahlungszeit t_b :

$$f_b \approx \frac{1 - e^{-\lambda_A t_b}}{\lambda_A t_b} \quad (7.11)$$

Der exakte Ausdruck ist in [Neu91] zu finden.

Dieser Ansatz bietet nun im Prinzip die Möglichkeit in Kenntnis der Anzahl der Mutterkerne N_T durch den Linieninhalt C_A den Querschnitt σ zu bestimmen (7.7, 7.10).

Bei der Bestimmung der $^{148(m)}\text{Pm}$ -Aktivität, die im ^{147}Pm -Ausgangsmaterial durch Neutronenbeschuß erzeugt wurde, führt der trotz Bleiabschirmung immer noch sehr hohe Bremsstrahlungsuntergrund zu so hohen Zählraten, daß Totzeiteffekte in der HPGe-Apparatur eine Rolle spielen. Letztlich bedeutet dies, daß eine absolute Zählrate C_A nicht genau bestimmt werden kann, da die Erfassung der Totzeit bei den extrem hohen Raten im niederenergetischen Bereich zu unpräzise wäre.

Die Tatsache allerdings, daß mit ^{147}Pm ein ebenfalls γ -aktiver Mutterkern vorliegt, kann genutzt werden, das Totzeitproblem zu umgehen. Das Verhältnis N_A/N_T in der Gleichung (7.10) für σ kann durch das Verhältnis von Linieninhalten C_A/C_T bestimmt werden. Mit Gleichung (7.7) folgt

$$\frac{N_A}{N_T} = \frac{C_A \cdot f_T}{C_T \cdot f_A} \quad (7.12)$$

wobei $f_{T,A}$ das Produkt der Korrekturen $f_w \cdot f_m \cdot f_\gamma \cdot \epsilon(E_\gamma, h)$ von Mutterbeziehungsweise Tochterkern ist. Eingesetzt in den Ausdruck für σ kann der Querschnitt somit über ein Linienverhältnis bestimmt werden.

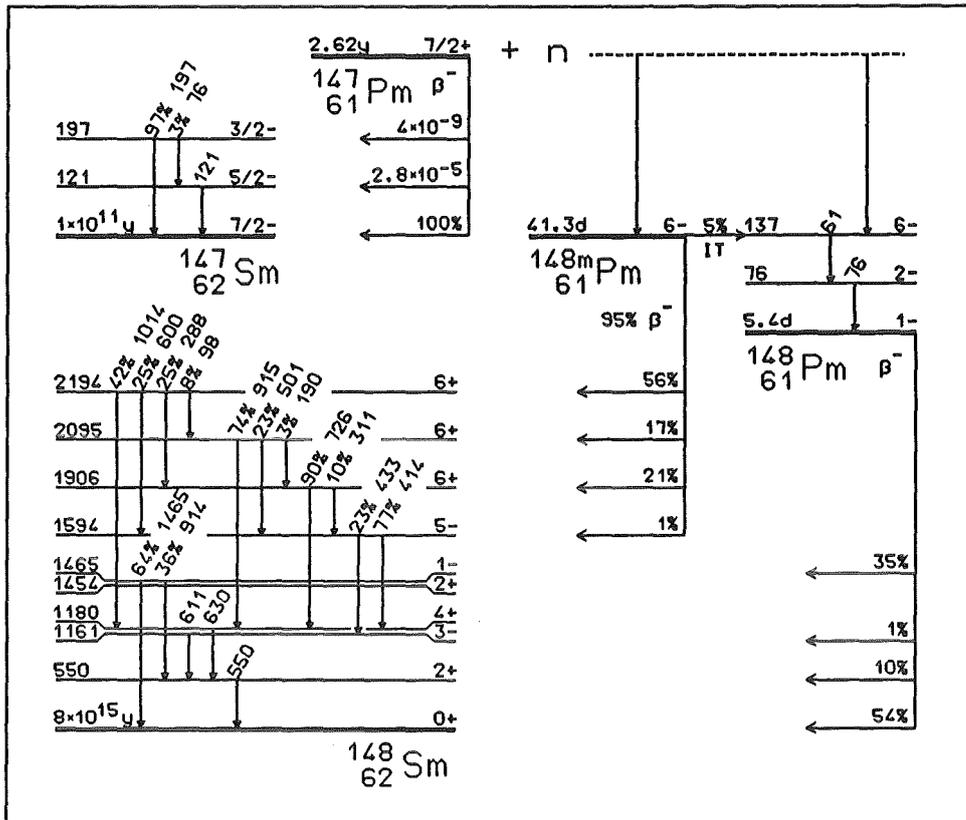


Abb. 7.7: Niveauschemata der am Zerfall und Neutroneneinfang von ^{147}Pm beteiligten Kerne.

Eine weitere Schwierigkeit wird aus den Niveauschemata der beteiligten Kerne ersichtlich (Abb. 7.7): es bleiben letztlich nur zwei γ -Linien aus den Zerfällen des ^{148}Pm und des $^{148\text{m}}\text{Pm}$ übrig, die eine ausreichende Intensität aufweisen und nicht von γ -Linien des ^{146}Pm überlagert werden (Abb. 7.3, 7.8 und 7.9). Es sind dies:

$$\begin{aligned} ^{148}\text{Pm}: E_{\gamma 1} &= 914 \text{ keV}, E_{\gamma 2} = 1465,1 \text{ keV} \\ ^{148\text{m}}\text{Pm}: E_{\gamma 1} &= 914,9 \text{ keV} \end{aligned}$$

Die Linien bei 914 KeV und 914,9 KeV können nicht getrennt werden - sie erscheinen als eine Mischlinie. Aus der $^{148\text{m}}\text{Pm}$ -Linie muß also der Anteil, der von den Zerfällen des ^{148}Pm resultiert, extrahiert werden. Eine solche Mischlinie setzt sich zusammen aus

$$C_{\gamma 1} = C_{\gamma 1}(148) + C_{\gamma 1}(148\text{m}) \quad (7.13)$$

Weiterhin läßt sich die Zahl $N_A(148)$ nach (7.7) durch beide γ -Linien des ^{148}Pm ausdrücken.

$$N_A(148) = \frac{C_{\gamma_1}(148)}{f_A(148, \gamma_1)} = \frac{C_{\gamma_2}(148)}{f_A(148, \gamma_2)} \quad (7.14)$$

Der Anteil $C_{\gamma_1}(148)$ aus dem ^{148}Pm -Zerfall an der γ_1 -Mischlinie ist demnach

$$C_{\gamma_1}(148) = C_{\gamma_2} \frac{f_A(148, \gamma_1)}{f_A(148, \gamma_2)} \quad (7.15)$$

Dabei bleibt von dem $f_A(i)$ -Verhältnis letztlich nur das Verhältnis der Nachweiswahrscheinlichkeiten $\epsilon(E_\gamma, h)$ und der relativen Linienintensitäten f_γ übrig. Wird also von der Nettozählrate der Mischlinie dieser Beitrag vom ^{148}Pm -Zerfall subtrahiert, bleibt die Liniensumme des ^{148m}Pm -Zerfalls. Der Einfangquerschnitt $\sigma_{n,\gamma}$ in den metastabilen Zustand kann so bestimmt werden.

Unter der Inkaufnahme des Fehlers, der durch eine Totzeitkorrektur eingeht, kann die ^{147}Pm -Aktivität der Probe zur Zeit der HPGe-Messung bestimmt werden. In einem Untergrundspektrum ohne Proben ist ebenso wie in den Probenspektren die ^{40}K -Linie mit $E_\gamma = 1460,7$ keV enthalten (Abb. 7.8). Es kann ein Totzeitfaktor definiert werden:

$$f_{tot} = \frac{C_{leer}(^{40}\text{K}) / t_m^{leer}}{C_{Probe}(^{40}\text{K}) / t_m^{Probe}} \quad (7.16)$$

Mit der Liniensumme $C(^{147}\text{Pm})$ der 121 keV-Linie ist die Aktivität:

$$A(^{147}\text{Pm}) = \frac{C(^{147}\text{Pm})}{t_m(^{147}\text{Pm}) \cdot f_\gamma \cdot \epsilon(E_\gamma, h)} \cdot f_{tot} \quad (7.17)$$

wobei f_γ die relative Linienintensität ist.

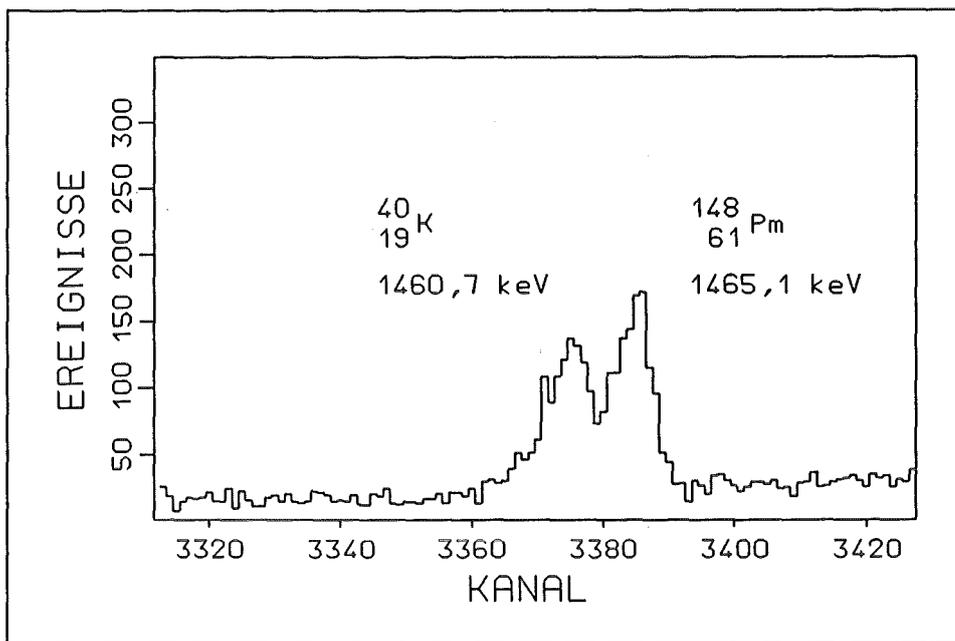


Abb. 7.8: Gamma-Linien des aktivierten ^{148}Pm und des ^{40}K aus der natürlichen Umgebungsaktivität.

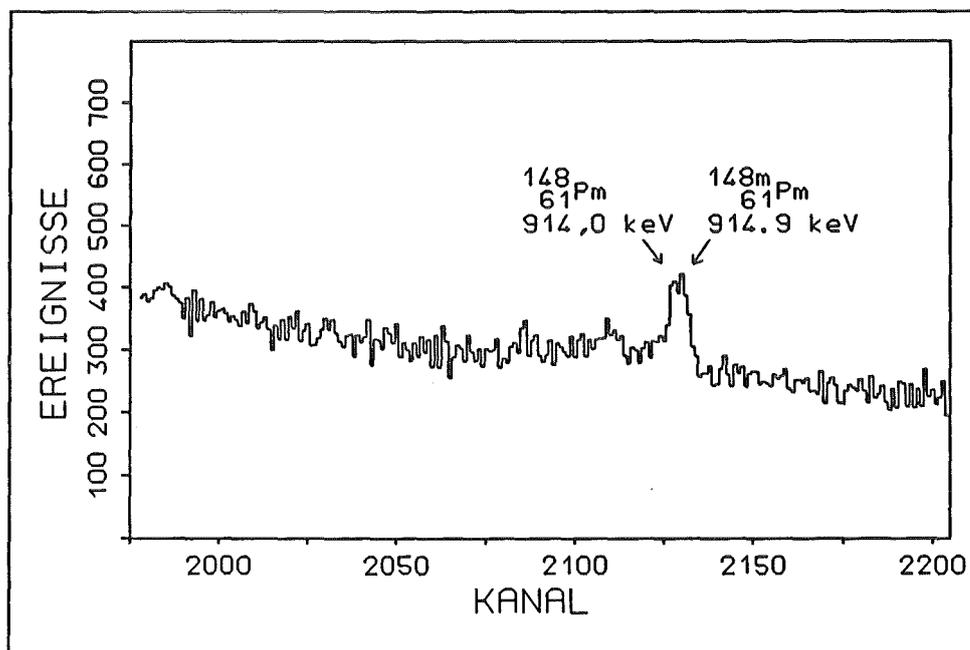


Abb. 7.9: Gamma-Linien des aktivierten ^{148}Pm und des Isomers $^{148\text{m}}\text{Pm}$ in einer Mischlinie.

7.4 Ergebnisse

Aus den ^{198}Au -Zählraten der Referenzproben wurde zunächst der integrale Neutronenfluß auf die ^{147}Pm -Probe bestimmt. Mit den Ausdrücken (7.7) und (7.10) sowie mit dem $\langle\sigma_{n,\gamma}\rangle$ -Querschnitt von ^{197}Au (648 mbarn, [Rat88]) folgt als Mittelwert aus den beiden Goldproben und den jeweils zwei Abständen h_1 und h_2 zwischen den Proben und dem HPGe-Detektor:

$$\Phi_{n,\text{tot}} = (1,35 \pm 0,07) \cdot 10^{14} \quad (7.18)$$

Die dazu notwendigen Probandaten sind der Tabelle 5.1 zu entnehmen, die Fehlerangabe resultiert aus der Fehlerfortpflanzung der in Tabelle 7.1 genannten Fehlerquellen durch die verwendeten Ausdrücke für $\Phi_{n,\text{tot}}$. Mit der Aktivierungszeit von 48 Stunden folgt

$$\Phi_n = 7,9 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1} \quad (7.19)$$

Aus dem Verhältnis der 1465 keV-Linie, die aus dem ^{148}Pm -Zerfall stammt (Abb. 7.8) zur 121 keV-Linie des Mutterkernes ^{147}Pm konnte der (n,γ) -Einfangquerschnitt bei einem quasi-stellaren n-Spektrum ($kT = 25 \text{ keV}$) des Folgekerns ^{147}Pm bestimmt werden:

$$^{147}\text{Pm}(n,\gamma)^{148}\text{Pm}: \quad \langle\sigma_{n,\gamma}\rangle = 301 \text{ mbarn} \pm 42 \text{ mbarn} \quad (7.20)$$

Mit der Zählrate der 1465 keV-Linie folgte aus dem Linieninhalt der Mischlinie bei 914..15 keV (Abb. 7.9) der Einfangquerschnitt in den angeregten Isomierzustand:

$$^{147}\text{Pm}(n,\gamma)^{148\text{m}}\text{Pm}: \quad \langle\sigma_{n,\gamma}\rangle = 202 \text{ mbarn} \pm 32 \text{ mbarn} \quad (7.21)$$

Die Fehlerquellen sind wieder Tabelle (7.1) zu entnehmen.

Als weiterer Fehler ist der isomere Übergang vom angeregten Zustand $^{148\text{m}}\text{Pm}$ in den Grundzustand ^{148}Pm zu nennen (Abb. 7.7). Dessen charakteristische γ -Linie von 137 keV verschwindet im hohen Untergrund in diesem Energiebereich. Zum Zeitpunkt der Aktivierungsbestimmung ist also eigentlich die Zahl der ^{148}Pm -Kerne um etwa 2% höher als sie es nur durch die (n,γ) -Reaktion wäre.

Schließlich ergab sich die Probenaktivität des ^{147}Pm nach (7.17) zu

$$A(^{147}\text{Pm}) = 2,15 \text{ Ci} \pm 0,17 \text{ Ci}, \text{ wobei } f_{\text{tot}} \approx 1,8 \quad (7.22)$$

Tabelle 7.1: Zusammenstellung der Meßfehler am HpGe-Detektor

Fehlerquelle	Fehler in % (^{158}Au)	Fehler in % (^{148}Pm)
Ereignisse C_A	0,14	5
Probendicke d	0,1	10
Zeitfaktor $f_w \cdot f_m \cdot f_b$	1	1
Linienintensität f_γ	0,1	5
Nachweiswahrsch. ϵ_{exp}	4	4
Referenzquerschn. σ_{Au}	1,5	-
-> Fehler in $\sigma(^{148}\text{Pm})$		14 (^{148}Pm), 16 ($^{148\text{m}}\text{Pm}$)

8. $\sigma_{n,\gamma}(^{147}\text{Pm})$ und der klassische s-Prozeß

Der klassische Ansatz für die Beschreibung der Nukleosynthese über den s-Prozeß geht von der Annahme aus, daß ein bestimmter Anteil G des Saatkernes ^{56}Fe einer Neutronenflußverteilung $\rho(\tau)$ ausgesetzt ist, die exponentiell vom zeitintegrierten Neutronenfluß $\tau = \int n_n v_T dt$ abhängt [Bur57]. Eine charakteristische Größe für den Syntheseverlauf im s-Prozeß ist das Produkt von n-Einfangquerschnitt und der relativen Häufigkeit eines Isotopes ($\sigma_{n,\gamma}(A) \cdot N(A)$). Unter der Verwendung der Kerne, die ausschließlich im s-Prozeß gebildet werden können, sind empirische Werte der beiden Parameter dieses Ansatzes, der ^{56}Fe -Anteil G und der mittlere Neutronenfluß τ_0 je Millibarn, berechenbar [Köp90]:

$$\rho(\tau) = \frac{G \cdot N_{\text{O}}^{56}}{\tau_0} e^{-\tau/\tau_0} \quad (8.1)$$

$$\begin{aligned} \text{wobei } G &= (0,057 \pm 0,004) \% \\ \tau_0 &= (0,295 \pm 0,009) \text{ mbarn}^{-1} \end{aligned}$$

Schritt für Schritt können damit die σN -Produkte der Isotope ausgehend vom jeweiligen Vorgängerisotop bestimmt werden.

$$\sigma N(^AZ) = \sigma N(^{A-1}Z) \zeta(^AZ) \quad (8.2)$$

Ist weder der Ausgangskern $A-1$, noch der Folgekern A instabil, dann ist

$$\zeta(^AZ) = \left(1 + \frac{1}{\sigma(^AZ) \cdot \tau_0} \right)^{-1} \quad (8.3)$$

Kommt es bei einem instabilen Isotop durch die Rate $\lambda_\beta = \ln 2/t_{1/2}$ zu einem Prozeß, der mit der Neutroneneinfangrate $\lambda_n = n_n v_T \sigma$ konkurriert, dann verzweigt der Synthesepfad im Verhältnis $f = \lambda_\beta / (\lambda_\beta + \lambda_n)$. ζ ist dann zu ersetzen durch

$$\xi(^AZ) = \left(\frac{1}{1-f(^AZ)} + \frac{1}{\sigma(^AZ) \tau_0} \right)^{-1} \quad (8.4)$$

Ist der Vorgängerkern ^{A-1}Z ebenfalls schon instabil, ist zusätzlich in (8.2) der Faktor $1/(1-f)$ des Vorgängers zu berücksichtigen. Für die Isotope Neodym, Promethium und Samarium ($A = 146-150$, Abb. 1.3) ergibt sich damit ein Gleichungssystem für alle $\sigma_{n,\gamma}(^AZ)$ -Werte in diesem Bereich [Win86].

Bisher stand für $\sigma_{n,\gamma}(^{147}\text{Pm})$ nur ein theoretischer Wert von etwa 1

barn zur Verfügung [Bao87]. Dieser Querschnitt ist doppelt so hoch wie die Summe der jetzt gemessenen Querschnitte in beide Zustände des Folgekerns:

$$\sigma(^{147}\text{Pm} (n, \gamma) ^{148(m)}\text{Pm}) = (505 \pm 53) \text{ mbarn.} \quad (8.5)$$

Dieser Wert paßt nicht zur Systematik einer Zusammenstellung der $\sigma_{n,\gamma}$ -Werte mit denen der benachbarten Isotope Nd und Sm [Win86].

Welchen Einfluß dieser Querschnitt im Rahmen der σN -Berechnungen nach obigem Schema tatsächlich hat, kann mit dem σN -Verhältnis solcher Kerne untersucht werden, die gegen andere Prozesse als den s-Prozeß abgeschirmt sind. Im vorliegenden Fall sind dies ^{148}Sm und ^{150}Sm .

- Reproduziert man die Häufigkeit N der oben genannten Isotope ausgehend von $\sigma N(^{146}\text{Nd})$ nach dem geschilderten Verfahren, so erhält man bei $kT = 29 \text{ keV}$

$$\left[\frac{\sigma N(^{148}\text{Sm})}{\sigma N(^{150}\text{Sm})} \right] = 0,892 \quad (8.6)$$

für $\sigma_{n,\gamma}(^{147}\text{Pm}) = 514 \text{ mbarn,}$
 $n_n = (3,4 \pm 1,1) \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}.$

Die Querschnittswerte aus [Bao87] sowie der vorliegende $\sigma_{n,\gamma}(^{147}\text{Pm})$ -Wert wurden dabei unter der Annahme einer $1/v$ -Proportionalität auf die Temperatur $kT = 29 \text{ keV}$ extrapoliert. Über die Rate λ_n geht die Neutronendichte n_n in die Verzweungsverhältnisse f_i ein und hat damit einen direkten Einfluß auf das Verhältnis (8.6).

- Mit den beobachteten Häufigkeiten $N(^{148,150}\text{Sm})$ ist ein experimenteller Wert bestimmbar:

$$\left[\frac{\sigma N(^{148}\text{Sm})}{\sigma N(^{150}\text{Sm})} \right]_{\text{exp}} = 0,913 \pm 0,003 \quad (8.7)$$

- Man kann nun einerseits versuchen, das gemessene Verhältnis (8.7) durch Variation von n_n im Rahmen des Fehlers zu reproduzieren:

$$\left[\frac{\sigma N(^{148}\text{Sm})}{\sigma N(^{150}\text{Sm})} \right] = 0,914 \quad (8.8)$$

mit $n_n = (2,8 \pm 0,9) \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}.$

- Andererseits liegt es nahe, die Querschnittswerte der Isotope $^{148,149}\text{Pm}$ analog zum gemessenen $\sigma_{n,\gamma}(^{147}\text{Pm})$ -Wert gegenüber den bisher angenommenen Werten zu reduzieren. Es folgt

$$\left[\frac{\sigma N(^{148}\text{Sm})}{\sigma N(^{150}\text{Sm})} \right] = 0,92 \quad (8.9)$$

mit $n_n = (3,4 \pm 1,0) \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$.

Im Vergleich mit dem experimentellen Wert (8.7) scheint sich diese Annahme zu bestätigen.

Jüngste Messungen der Sm-Querschnitte am Karlsruher 4π -BaF Detektor ermöglichen es durch präzisere $\sigma_{n,\gamma}$ -Werte in einer umgekehrten Vorgehensweise die Neutronendichte genauer zu bestimmen [Wis92]:

$$n_n = (3,4 \pm 0,3) \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}. \quad (8.10)$$

Der dort erneut gemessene Querschnitt $\sigma_{n,\gamma}(^{147}\text{Sm}) = (931 \pm 7) \text{ mbarn}$ im Bereich $E_n = 3..225 \text{ keV}$ stimmt mit dem hier gemessenen Wert von $(933 \pm 52) \text{ mbarn}$ überein.

Damit ist offensichtlich, daß der Einfluß des Wirkungsquerschnittes $\sigma_{n,\gamma}(^{147}\text{Pm})$ auf die freien Parameter des klassischen Modells des s-Prozesses nicht mehr nur im Fehlerbereich liegt. Es bietet sich somit die Möglichkeit, bestehende Modellvorstellungen entsprechend zu verfeinern.

Anhang A

 ^{147}Sm : $\sigma_{n,\gamma}(E_n)$ - Querschnitte

n-Energie [keV]	$\sigma_{n,\gamma}$ (^{147}Sm) [mbarn]
100	425 ₂₀
90	440 ₁₆
80	499 ₁₇
70	565 ₁₇
60	587 ₁₉
50	671 ₂₁
41	763 ₂₈
35	810 ₃₂
30	939 ₄₀
25	1052 ₄₆
20	1104 ₅₂
15	1569 ₈₈
10	2214 ₁₄₉
7	2537 ₃₃₈
6	2718 ₅₁₄
5	2858 ₈₄₅
4	2722 ₆₀₅
3	3101 ₁₁₈₃
2	2808 ₁₀₆₃

Statistischer Fehler: wie angegeben

Systematischer Fehler: 3,5%

Literaturverzeichnis

- [Ajz75] F.Ajzenberg-Selove, Nucl. Phys. **A413** (1975), 1
- [All71] B.J. Allen, R.L. Macklin, Phys. Rev. (1971), **C3** 1737
- [Alo91] J.I.G. Alonso, Institut für Transurane, KfK Karlsruhe, private Mitteilung (1991)
- [Bab74] R.P. Babu, V.A. Narasimhamarthy, K. Narasimhamarthy, J. Phys. Vol.7, **18** (1974), 2295
- [Bao87] Z.Y. Bao, F. Käppeler, Atomic Data and Nuclear Data Tables (1987) **36**, 411
- [Bao92] Z.Y. Bao (1992) private Mitteilung, Veröffentlichung in Vorbereitung.
- [Bee80] H. Beer, F. Käppeler, Physical Review (1980), **C21**, 534
- [Bro66] S.C. Brown, MIT, USA (1966), John Wiley & Sons, New York
- [Bur57] G.R. Burbidge, E.M. Burbidge, W.A. Fowler, F. Hoyle, Rev. Mod Phys. (1957) **29**, 54
- [Che77] F.F. Chen, Plenum-Press USA (1977), "Introduction to Plasma Physics"
- [Cla68] D.D. Clayton, McGraw-Hill Book Company, USA (1968) "Principles of Stellar Evolution and Nucleosynthesis"
- [Con71] D. McConnon, Appl. Radiation and Isotopes, Vol. **22** (1971), 253-4
- [Dil90] H. Dilger, Abteilung HS, KfK Karlsruhe, private Mitteilung (1990)

- [Dim92] C. Dimitrijevic, Praktische Berechnung der Abschirmung von radioaktiver und Röntgenstrahlung, Verlag Chemie, Heidelberg (1972)
- [Flü56] S. Flügge, Handbuch der Physik, 12 (1956), Springer Verlag Heidelberg. Dort: S. C. Brown "Breakdown in Gases: Alternating and High Frequency Fields"
- [Frö68] F. H. Fröhner, SESH - A Fortran IV Code (1968), GA-8380, Gulf General Atomic Company
- [Gub90] K. Guber, IK3, KfK Karlsruhe, private Mitteilung (1990)
- [Ibe78] I. Iben Jr., J.W. Truran, Ap. J., 22 (1978), 980
- [ICR84] ICRU-Report 37, (1984), Stopping Power for Electrons and Positrons
- [Iye74] K.V.K. Iyengar, B. Lal, M.L. Jhingan, Nucl. Instr. Meth., (1974), 121, 33
- [Jaa90] S. Jaag, Diplomarbeit Universität Karlsruhe (1990)
- [Käp89] F. Käppeler, H. Beer, K. Wisshak, Rep. Prog. Phys. 52 (1989) 945
- [Käp90] F. Käppeler, (1990) Astrophys. J. 354, 630
- [Kör57] K. Körper, Zeitschrift für Naturforschung 12a (1957) 815-821
- [Kör60] K. Körper, Zeitschrift für Naturforschung 15a (1960) 226-235
- [Lan50] L.M. Langer et. al., Phys. Rev. Vol 77, (1950), 77
- [Lan88] V. McLane, Ch. L. Dauford, P.F. Rose, Neutron Cross Sections, Vol.2 (1988), Academic Press, New York
- [Law77] J.D. Lawson, Clarendon Press, Oxford (1977), "The Physics of Charged Particle Beams"

- [Led78] C. M. Lederer, V. S. Shirley, Tables of Isotopes, 7th edition, John Wiley & Sons, New York (1978)
- [Mal75] S.S. Malik, Nucl. Instr. Meth. (1975), **125**, 45
- [Mal75a] S.S. Malik, C.F. Majkrzak, Nucl. Instr. Meth., (1975), **130**, 443
- [Min90] M. Mingxin, K.G. Stephans, B.J. Sealy, J.E. Mynard, Nucl. Instr. Meth. (1990) **A288**, 303
- [Miz89] M. Mizumoto, M. Sigimoto, Nucl. Instr. Meth., (1989), **A282**, 324
- [Mox63] M. C. Moxon, E. R. Rae, Nucl. Instr. Meth. **24**, 445 (1963)
- [Nas71] E. Nasser, "Fundamentals of Gaseous Ionization and Plasma Electronics", John Wiley & Sons, London (1971)
- [NBS52] NBS, National Bureau of Standards, Appl. Math. Ser. **13**, USA (1952)
- [Neu91] D. Neuberger, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (1991)
- [Rat88] W. Ratynski, F. Käppeler, Physical Review (1988), **C37**, 595
- [Ratz88] U. Ratzel, Diplomarbeit Universität Karlsruhe, (1988)
- [Ref91] G. Reffo, Universität Bologna, private Mitteilung (1991)
- [Sch68] V. Scherer, Report K 68-03, Bundesministerium für wissenschaftliche Forschung (1968)

- [Sch81] W. D. Schleifer, "Hochfrequenz- und Mikrowellenmeß-
technik in der Praxis", A. Hüthing Verlag Heidelberg
(1981)
- [Sep67] A. Septier, "Focusing of Charged Particles", Acade-
mic Press, New York, London, (1967),
- [Spä88] P. Spädtke, Report GSI-89-9 (1988)
- [Sto70] E. Storm, H. I. Israel, Nucl. Data Tables, **A7**, 565
(1970)
- [Tep91] M. Tepe, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe, (1991)
- [Val77] L. Valyi, "Atom- and Ion-Sources", John Wiley &
Sons, London (1977)
- [Vei73] W.M.J. Veigele, Atomic Data, **Vol 5**, No 1, (1973)
- [Wei69] F. Weigel, Fortschr. chem. Forsch. **12/4**, 539, (1969)
- [Win86] R.R. Winters et. al., Astr. J. **300**, 41, (1986)
- [Wis84] K. Wisshak, G. Walter, F. Käppeler, Nucl. Instr.
Meth., **219**, 136, (1984)
- [Wis90] K. Wisshak et. al., Nucl. Instr. Meth. **A292**, 595,
(1990)
- [Wis92] K. Wisshak, private Mitteilungen (1992)