

FORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Technik und Umwelt

Wissenschaftliche Berichte

FZKA 5985

**DIE NUKLEOSYNTHESE VON  $^{180}\text{Ta}$   
IM S-PROZESS**

M. SCHUMANN

Institut für Kernphysik

# Inhaltsverzeichnis

<b>Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>1 Nukleosynthese von <math>^{180}\text{Ta}</math></b>	<b>5</b>
1.1 Nukleosynthese der schweren Elemente: s-, r-, und p-Prozess.....	5
1.2 Entstehung von $^{180}\text{Ta}$ .....	7
1.2.1 Synthese im s-Prozess.....	8
1.2.2 Destruktion im stellaren Medium .....	9
<b>2 Neutroneneinfang am <math>^{179}\text{Ta}</math></b>	<b>11</b>
2.1 Probenherstellung.....	12
2.1.1 Synthese von $^{179}\text{Ta}$ .....	12
2.1.2 Chemische Trennung .....	13
2.1.3 Probenträger.....	17
2.2 Thermische Aktivierung .....	19
2.2.1 Die Kadmiumdifferenz-Methode .....	19
2.2.2 Aktivierung im Reaktor .....	23
2.2.3 Fehlerbetrachtung.....	28
2.2.4 Ergebnisse.....	30
2.3 Stellarer Neutroneneinfangquerschnitt .....	34
2.3.1 Aktivierung im quasistellaren Spektrum .....	34
2.3.2 Bestimmung der induzierten Aktivität .....	35
2.3.3 Ergebnisse.....	40
<b>3 Coulombanregung von <math>^{180}\text{Ta}</math></b>	<b>43</b>
3.1 Grundlagen der Coulombanregung .....	44
3.1.1 Wirkungsquerschnitte .....	44
3.1.2 Gültigkeit der semiklassischen Beschreibung, Korrekturen .....	46
3.1.3 Integrale Ausbeuten.....	47
3.2 Experimente.....	47
3.2.1 Coulombanregung mit $\alpha$ -Teilchen.....	47
3.2.2 Coulombanregung mit Protonen.....	59
3.2.3 Diskussion der Ergebnisse .....	62

<b>4 Astrophysikalische Implikationen</b>	<b>71</b>
4.1 Auswirkungen der Kopplung .....	71
4.2 Synthese im s-Prozess.....	74
4.2.1 Klassischer s-Prozess .....	74
4.2.2 Stellare Modelle .....	75
4.3 Alternative Syntheseprozesse.....	76
4.3.1 r-Prozess.....	76
4.3.2 p-Prozess .....	76
4.3.3 Spallation im interstellaren Medium.....	77
4.3.4-Prozess .....	77
4.3.5 Photodisintegration bei niedrigeren Temperaturen .....	78
<b>5 Schlussbemerkungen</b>	<b>79</b>
<b>Anhang: Semiklassische Theorie der Coulombanregung</b>	<b>83</b>
<b>Referenzen</b>	<b>87</b>

# Einleitung

Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Frage nach der Entstehung von  $^{180}\text{Ta}$ , dem seltensten stabilen Isotop im Universum.

Historisch wurde die Frage nach der Herkunft der Elemente meist mit dem Ursprung des Universums verknüpft. Waren diese Theorien anfänglich ausschließlich philosophisch oder religiös begründet, ermöglichte die Entdeckung des sich expandierenden Weltalls [Hub20] und die damit aufkommende Urknall-Theorie eine naturwissenschaftliche Verbindung zwischen Nukleosynthese und Entstehung des Universums [Gam48].

In den ersten Jahrzehnten des 20. Jahrhunderts gab man die Vorstellung, dass die Gravitationsenergie die alleinige Energiequelle der Sterne sei, endgültig auf. Mit den wachsenden Erkenntnissen der Kernphysik konnten Bethe und von Weizsäcker in den späten Dreißigern zeigen, dass Fusionsreaktionen am Wasserstoff die Energiequellen der Sterne sind [Bet39]. Damit legten sie den Grundstein für die stellare Nukleosynthese und für die Verschmelzung zweier Teilgebiete der Physik, der Kern- und der Astrophysik zur Nuklearen Astrophysik. Durch die theoretischen und technischen Errungenschaften in der zweiten Hälfte dieses Jahrhunderts sind nun quantitative Aussagen über die Elemententstehung möglich geworden. Der Traum der Alchimisten, Gold aus Eisen zu synthetisieren, konnte bestätigt werden, und so ist heute allgemein anerkannt, dass überwiegend durch Kernreaktionen in Sternen die Synthese aller Elemente aus dem Urwasserstoff erfolgte und auch immer noch erfolgt.

Trägt man gemäß der von Weizsäcker'schen Massenformel die Bindungsenergie gegenüber der Massenzahl auf, so zeigt sich, dass durch Fusionsreaktionen Energie nur bis zum Eisen gewonnen werden kann. Heutige Sternmodelle bestätigen, dass diese Fusionsreaktionen in massiven Sternen auch bis zum Eisen ablaufen. Darüber hinaus können aber — aufgrund der immer größer werdenden Coulombabstoßung zwischen den Kernen — keine signifikanten Anteile schwerer Elemente gebildet werden. Es bleibt also die Frage nach der Entstehung der Elemente zwischen Eisen und den Aktiniden.

Ein Durchbruch für die Nukleosynthese der schweren Elemente in Sternen gelang 1952 durch die Entdeckung von Technetium-Linien in Roten Riesen [Mer52]. Da Technetium mit einer Halbwertszeit von  $t_{1/2} \leq 6$  Mio. Jahren zerfällt, konnte es nur in diesen Sternen selbst entstanden sein. Eine detaillierte Theorie über die Nukleosynthese in Sternen wurde 1957 unabhängig voneinander durch Cameron [Cam57] und Burbidge, Burbidge, Fowler und Hoyle [B<sup>2</sup>FH] aufgestellt. Dabei wurden für die Synthese der schweren Elemente drei Prozesse (s-, r- und p-Prozess) vorgeschlagen, mit denen die beobachteten Häufigkeiten aller schweren Isotope erklärt werden können. Eine Ausnahme bildet  $^{180}\text{Ta}$ , dessen Ursprung auch heute noch unbekannt ist. Eine Möglichkeit der Synthese besteht allerdings durch Neutroneneinfang im s-Prozess.

Die Aufgabenstellung dieser Arbeit umfasst zwei Probleme hinsichtlich dieser möglichen Entstehung von  $^{180}\text{Ta}$ .

Erstes Ziel war, den Synthesemechanismus zu quantifizieren, d.h. den stellaren Neutroneneinfangquerschnitt des radioaktiven Isotops  $^{179}\text{Ta}$  erstmalig experimentell zu bestimmen. Die Hauptschwierigkeit liegt dabei an der Herstellung einer geeigneten  $^{179}\text{Ta}$ -Probe. Die diesbezüglichen Experimente und die Diskussion der Ergebnisse sind in Kapitel 2 zusammengefasst.

Der zweite Teil der Arbeit beschäftigt sich mit der Frage nach einer möglichen Zerstörung der bei s-Prozess-Temperaturen gebildeten Kerne. Eine Destruktion kann durch eine Depopulation des stabilen Isomers im  $^{180}\text{Ta}$  mittels thermisch induzierte Übergänge zum radioaktiven Grundzustand erfolgen. Die Untersuchungen dazu wurden anhand von Coulombanregungs-Experimenten durchgeführt und sind in Kapitel 3 dargestellt.

Im Anschluss daran werden in den Kapiteln 4 und 5 die Implikationen diskutiert. Bevor mit der Darstellung der Experimente begonnen wird folgt in Kapitel 1 eine nähere Betrachtung des Synthese- und Destruktionsmechanismus von  $^{180}\text{Ta}$ .

## Kapitel 1

# Nukleosynthese von $^{180}\text{Ta}$

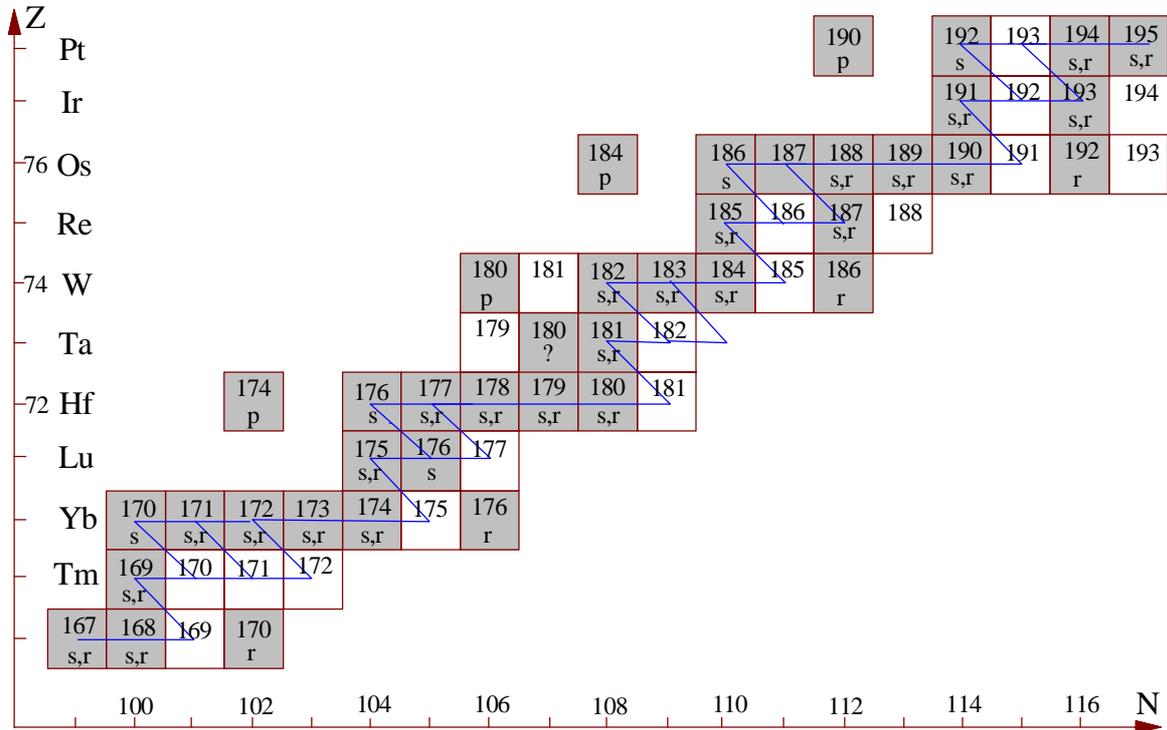
## 1.1 Nukleosynthese der schweren Elemente: s-, r-, und p-Prozess

Die dominierende Synthesereaktion im Bereich  $A > 60$  ist der Neutroneneinfang, so dass fast alle stabilen Isotope durch sukzessive Einfangreaktionen und nachfolgende  $\beta^-$ -Zerfälle gebildet werden. Aufgrund unterschiedlicher Zeitskalen unterscheidet man den *s* (slow) - und den *r* (rapid) *Neutroneneinfang-Prozess*. Neutronenarme Kerne, die nicht auf diese Weise gebildet werden können, werden dem sogenannten *p-Prozess* zugeordnet.

### Der s-Prozess

Abb. 1.1 zeigt einen Ausschnitt aus der Nuklidkarte im Massenbereich  $A=167-195$ . Die s-Prozess-Synthese verläuft entlang der eingezeichneten Linie (s-Prozess-Pfad) im Stabilitätstal, da die mittlere Neutroneneinfangszeit in der stellaren Umgebung mit  $t_{(n,\gamma)} \approx 1$  y im allgemeinen deutlich größer als die konkurrierende  $\beta^-$ -Halbwertszeit ist. So beginnt der s-Prozess-Pfad mit dem Saatkern Eisen  $^{56}\text{Fe}$  und endet schließlich bei  $^{209}\text{Bi}$ .

An Isotopen mit  $t_{\beta} \approx t_{(n,\gamma)}$  verzweigt der s-Prozess-Pfad, da sich nur ein Bruchteil  $f$  der Verzweigungsisotope durch  $\beta^-$ -Zerfall in das betreffende Isobar umwandelt, während der verbleibende Rest  $(1-f)$  via  $(n,\gamma)$ -Reaktion in das Isotop  $(Z,A+1)$  umgewandelt wird. Das Verzweigungsverhältnis  $f$  hängt naturgemäß von der  $\beta^-$ -Zerfallsrate und der Neutroneneinfangsrate ab, die durch die Temperatur, die Neutronendichte und durch die Materiedichte beeinflusst werden. Setzt man einen statischen Prozess (*klassischer s-Prozess*) voraus, so erhält man mittels systematischer Analyse dieser Verzweigungspunkte die stellaren Bedingungen für den s-Prozess. Für  $90 < A < 204$  ergeben sich:  $T \approx 3 \cdot 10^8$  K,  $n_n \approx 4 \cdot 10^8$  cm $^{-3}$ ,  $\rho \approx 10^3$  g/cm $^3$  [Köp90]. Heutige Sternmodellrechnungen zeigen, dass diese Bedingungen beim He-Schalen-Brennen in Roten Riesen mit 1-3 Sonnenmassen, die sich im Spätstadium



**Abb. 1.1:** Der s-Prozess-Pfad im Massenbereich  $A = 167-195$ . Die stabilen Nuklide sind grau schraffiert und gemäß ihrer Synthese bezeichnet.

ihrer Evolution (AGB-Phase<sup>1</sup>) befinden, vorherrschen. Diese Sterne verlieren durch den Sternwind große Teile ihrer Masse, so dass damit die frisch synthetisierten Elemente in das interstellare Medium gemischt werden können und somit als Ausgangsmaterial neuer Sterngenerationen dienen.

## Der r-Prozess

Im Gegensatz zum s-Prozess spielt sich der r-Prozess, wie der Name schon andeutet, sehr schnell ab. Die mittlere Neutroneneinfangszeit liegt hier bei  $t_{(n,\gamma)} \approx 10^{-4}$  s, was Neutronendichten von  $n_n \geq 10^{20}$  cm<sup>-3</sup> entspricht. Da die  $\beta^-$ -Halbwertszeiten nahe dem Stabilitätstal viel größer als  $10^{-4}$  s sind, verläuft der r-Prozess-Pfad ca. 10-20 Masseneinheiten vom Stabilitätstal entfernt in einem Bereich, in dem die Neutronenbindungsenergien auf ca. 2 MeV abgesunken sind. Ist der eigentliche Syntheseprozess beendet, so zerfallen die gebildeten Nuklide zurück zum Stabilitätstal. Auf diese Weise lassen sich insbesondere die neutronenreichen Isotope erklären, die durch den s-Prozess-Pfad nicht erreicht werden.

Die kurze Dauer des r-Prozesses (im Bereich von Sekunden) deutet auf einen explosiven Mechanismus hin. Wahrscheinlichster astrophysikalischer Ort ist nach heutigem Verständnis eine Supernova-Explosion.

<sup>1</sup>Eine ausführlichere Darstellung findet sich in Kap.4.

## Der p-Prozess

In Abb. 1.1 erkennt man, dass einige Nuklide weder durch den s-, noch durch den r-Prozess gebildet werden können, da sie auf der neutronenarmen Seite des Stabilitätstals liegen (zum Beispiel  $^{174}\text{Hf}$ ). Die Isotopenhäufigkeit dieser Kerne — ungefähr 35 werden dem p-Prozess zugeordnet — ist typischerweise 100-1000 kleiner als die entsprechenden s-, bzw. r-Häufigkeiten.

Die Synthesemechanismen des p-Prozesses sind hauptsächlich Protoneneinfang- und Photodisintegrationsreaktionen an den s- und r-Saatkernen, wobei der Protoneneinfang aufgrund der großen Coulombbarriere überwiegend auf die leichten p-Kerne beschränkt ist. Eine Analyse zeigt, dass die Photodisintegrationsraten bei Temperaturen unterhalb  $10^9$  K vernachlässigbar sind und  $2\text{-}3 \cdot 10^9$  K benötigt werden, um die p-Häufigkeiten zu reproduzieren. Diese hohen Temperaturen werden in den späteren Evolutionsstadien massiver Sterne, insbesondere in Supernovae erreicht, die deshalb als wahrscheinlichster stellarer Ort für den p-Prozess angesehen werden [Ray87], [Ray90].

## 1.2 Entstehung von $^{180}\text{Ta}$

Das Element Tantal wurde 1802 von A.G. Ekeberg in Schweden entdeckt. Er nannte es wegen seiner Unfähigkeit, mit Säuren ein Salz zu bilden — *und es daher „schwächen muss und seinen Durst nicht löschen kann, wie Tantalus in der Unterwelt“* — Tantal. Es ist das seltenste stabile Element im Universum (0.02 relativ zu Silizium  $\approx 10^6$ ) und setzt sich aufgrund der ungeraden Kernladungszahl nur aus zwei Isotopen zusammen. Erst 1954 entdeckte man  $^{180}\text{Ta}$ , das im natürlichen Isotopenverhältnis mit 0.012 % vorliegt und damit das seltenste stabile Nuklid im Kosmos ist.

Diese zwar geringe, aber dennoch von Null verschiedene Häufigkeit verdankt der uu-Kern  $^{180}\text{Ta}$  der Existenz eines stabilen Isomers ( $t_{1/2} > 1.2 \cdot 10^{15}$  a); der Grundzustand selbst ist instabil und zerfällt durch Elektroneneinfang und  $\beta^-$ -Emission zu  $^{180}\text{Hf}$  bzw.  $^{180}\text{W}$  (siehe Abb. 1.2). Somit ist  $^{180}\text{Ta}$  das einzige natürlich vorkommende Isomer. Die lange Lebensdauer ist durch die große K-Verbotenheit des direkten Übergangs ( $\Delta K = 8$ ) zu erklären. Dieser K-Isomerismus ist bei stark deformierten Kernen in dieser Massenregion keine Seltenheit.

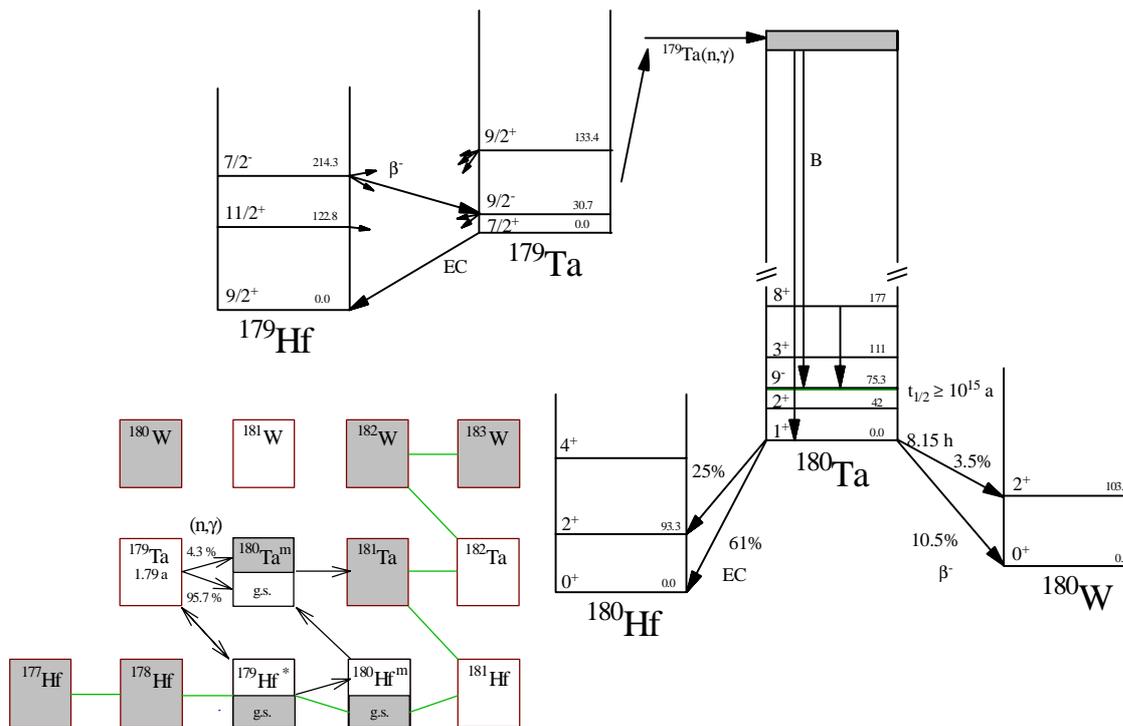
Vergleicht man die natürliche Häufigkeit von  $^{180}\text{Ta}$  mit anderen seltenen uu-Kernen ( $^{50}\text{V}/^{51}\text{V} = 0.24\%$ ,  $^{138}\text{La}/^{139}\text{La} = 0.092\%$ ), so ist durch die um eine Größenordnung geringere  $^{180}\text{Ta}$ -Häufigkeit ein Hinweis auf die Schwierigkeit der Synthese und auf einen eventuell unterschiedlichen Synthesemechanismus gegeben.

Ein Blick auf die Nuklidkarte (Abb. 1.1) zeigt, dass das Isotop zum einen abseits vom s-Prozess-Pfad liegt, und zum anderen durch  $^{180}\text{Hf}$  von der Bildung im r-Prozess abgeschirmt wird. Daher wurde es traditionell dem p-Prozess zugeordnet. Das Problem dabei war jedoch, dass anfängliche p-Prozess Rechnungen die solare Häufigkeit nicht reproduzieren konnten. Dies spornte eine Reihe von Wissenschaftlern an, das Rätsel um die Entstehung durch die verschiedensten Mechanismen zu erklären. Bis dato stehen dafür neben den „traditionellen“ Prozessen (s, r, p) auch exotischere Möglichkeiten ( $\nu$ -Prozess, Spallation im interstellaren Medium oder  $\gamma$ -Prozess bei niedrigeren Temperaturen) zur Diskussion, die  $^{180}\text{Ta}$  teilweise

oder sogar gänzlich zu produzieren vermögen<sup>2</sup>. Im Gegensatz zu allen Alternativprozessen ist die Entstehung im s-Prozess die einzige, die quantitativ untersucht werden kann. Dabei ist der klassische s-Prozess nicht durch parametrisierte Sternmodelle belastet und enthält deshalb auch nicht die Unsicherheiten, wie sie beispielsweise in explosiven Mechanismen auftreten.

### 1.2.1 Synthese im s-Prozess

Eine Produktion von  $^{180}\text{Ta}$  im s-Prozess basiert auf den zwei in Abb. 1.2 eingezeichneten Verzweigungen des s-Prozess-Pfades. Die von Beer et al. [Bee81] vorgeschlagene Verzweigung im  $^{180}\text{Hf}$  beruht auf der partiellen Population (1.24% [Bee82]) des 5.5 h Isomers im  $^{180}\text{Hf}$  durch Neutroneneinfang, welches neben dem elektromagnetischen Zerfall auch  $\beta^-$ -Zerfallskanäle zum  $^{180}\text{Ta}$  besitzt. Aus der Messung des  $\beta^-$ -Verzweungsverhältnisses durch Kellogg et al. [Kel92] ergab sich, dass maximal 25-50 % der solaren Häufigkeit von  $^{180}\text{Ta}$  über diesen Weg entstanden sein können.



**Abb. 1.2:** Zu  $^{180}\text{Ta}$  führende Verzweigungen im s-Prozess-Pfad. Das Niveauschema (nicht maßstabsgetreu) verdeutlicht die Verzweigung im  $^{179}\text{Hf}$ .

<sup>2</sup>Eine ausführlichere Diskussion dieser Prozesse findet sich in Kap.4.

Eine weitere Möglichkeit der Synthese im s-Prozess ergibt sich durch die Verzweigung im  $^{179}\text{Hf}$ . Yokoi und Takahashi [Yok83] konnten zeigen, dass die unter stellaren Bedingungen thermisch besetzten angeregten Zustände von  $^{179}\text{Hf}$  instabil gegen  $\beta^-$ -Zerfall sind. Aufgrund der langen Halbwertszeit von  $^{179}\text{Ta}$  bildet sich in der stellaren Umgebung ein von der Temperatur und von der Elektronendichte abhängiges  $^{179}\text{Ta}/^{179}\text{Hf}$ -Verhältnis, so dass mittels Neutroneneinfang am  $^{179}\text{Ta}$  das Isomer im  $^{180}\text{Ta}$  bevölkert werden kann.

Der Großteil der Einfänge (95.7%) führt allerdings zum Grundzustand und beeinflusst insbesondere über dessen  $\beta^-$ -Zerfall auch den s-Anteil der Häufigkeit von  $^{180}\text{W}$ , das zu einem signifikanten Teil im p-Prozess produziert wird. Um nicht allzusehr von der glatten Häufigkeitsverteilung der p-Prozess-Isotope abzuweichen [And89], ist der s-Anteil an  $^{180}\text{W}$  auf ca. 30% limitiert. Die so bedingte Einschränkung für den s-Anteil lässt sich im Hinblick auf die physikalischen Bedingungen im s-Prozess interpretieren. Die entscheidenden Parameter für eine diesbezügliche Analyse der Verzweigung bei  $A = 179$  sind die Temperatur und der Neutroneneinfangquerschnitt von  $^{179}\text{Ta}$  [Nem92], für den es bisher nur relativ unsichere Rechnungen gibt. Eine experimentelle Bestimmung würde daher eine bessere Charakterisierung des s-Prozesses und somit eine Quantifizierung des s-Prozess-Anteils an der solaren Häufigkeit von  $^{180}\text{Ta}$  erlauben.

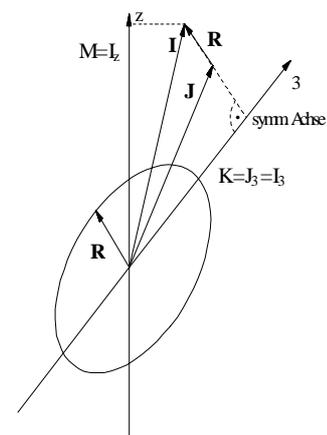
## 1.2.2 Destruktion im stellaren Medium

Damit eine s-Prozess-Synthese signifikant ablaufen kann, dürfen die gebildeten  $^{180}\text{Ta}$ -Nuklide keine effektive Destruktion erfahren. Neben dem erneuten Neutroneneinfang besteht die Möglichkeit einer Entvölkerung des Isomers im  $^{180}\text{Ta}$  durch induzierte Übergänge zum Grundzustand. Zwar sind unter irdischen Bedingungen direkte Übergänge ausgeschlossen, doch könnte sich dieser Sachverhalt in der heißen stellaren Umgebung durch Population angeregter Zustände durchaus ändern.

Die Verbotenheit des direkten Übergangs lässt sich innerhalb des Rotor-Modells erklären. Bei Kernen mit einer beträchtlichen Zahl von Nukleonen außerhalb abgeschlossener Schalen bewirkt die langreichweitige Komponente der Kernkraft eine stabile Quadrupoldeformation des Atomkerns. Die Anregungsspektren dieser Kerne zeigen dann, in Analogie zu Molekülen, Rotationsspektren mit einfachen Beziehungen für die Anregungsenergie, den Spin und die Parität der Zustände. Eine beliebige Anregung lässt sich damit in eine innere Anregung (d.h. durch Anregung eines individuellen Nukleons) und eine kollektive Anregung (d.h. durch eine Rotation aller Nukleonen senkrecht zur Symmetrieachse) separieren. Die Wellenfunktion des Kerns setzt sich somit aus dem Produkt von innerer Wellenfunktion  $\chi$  und der Rotationswellenfunktion  $\phi_{MK}^I$  zusammen,

$$\Psi_{MK}^I = \chi \cdot \phi_{MK}^I,$$

die nunmehr durch die Quantenzahlen  $I$ ,  $M$  und  $K$  charakterisiert ist, wobei der Gesamtdrehimpuls  $I$  der Vektor-



**Abb. 1.3:** Drehimpulskopplung im Rotor-Modell.

summe von innerem Drehimpuls  $\mathbf{J}$  und Rotationsdrehimpuls  $\mathbf{R}$  entspricht (vgl. Abb. 1.3). Die Projektion des inneren Drehimpulses auf die Symmetrieachse,  $K$ , ist daher eine Konstante der Bewegung, und so existiert zu jeder Einstellung des inneren Drehimpulses eine zugehörige Rotationsbande. Erlaubte Übergänge der Multipolarität  $L$  zwischen den Banden werden durch die Drehimpuls-Auswahlregel  $\Delta K \leq L$  regiert. Die  $K$ -Auswahlregel ist aber nur im Falle eines exakten Separationsansatzes streng gültig. Letzterer kann aber nur eine Näherung sein, so dass genaugenommen die Gesamtwellenfunktion  $\psi'_{MK}$  durch Störungen immer auch Beimischungen anderer  $K$ -Zustände enthält; entsprechend erscheint die  $K$ -Auswahlregel aufgeweicht. Man spricht dennoch von  $K$ -verbotenen Übergängen, da in den meisten Fällen, insbesondere bei niederenergetischen Anregungen, die Störungen klein sind und damit die Beimischungen ebenfalls gering ausfallen. Ein Beispiel dafür ist die extreme Behinderung des direkten Übergangs von Isomer zum Grundzustand im  $^{180}\text{Ta}$ .

Der Separationsansatz verliert seine Gültigkeit bei höheren Anregungsenergien. Anschaulich gesehen werden durch die erhöhte Umlaufgeschwindigkeit der Nukleonen erhebliche Störungen induziert, die zu beträchtlichen Konfigurationsmischungen führen. In der Regel werden starken Mischungen an der Neutronenschwelle beobachtet, allerdings sind kürzlich auch Zustände bei Energien um 3 MeV in  $^{174}\text{Hf}$  und  $^{180}\text{Ta}$  nachgewiesen worden [Col92].

Werden solche Zustände durch Absorption von Photonen in der heißen stellaren Umgebung populiert, so können sie als Mittler für Übergänge zwischen dem Grundzustand und dem Isomer im  $^{180}\text{Ta}$  wirken und somit eine Depopulation des stabilen Isomers einleiten. Die Effektivität einer solchen Destruktion hängt natürlich kritisch von der Anregungsenergie des Mittlerzustandes ab. Die von Collins et al. [Col90] beobachteten Zustände bei 2.8 MeV und 3.6 MeV können bei  $s$ -Prozess-Temperaturen von  $kT = 25$  keV nicht ausreichend bevölkert werden. Existierte jedoch ein Mittlerzustand unterhalb 1 MeV, würde dies zu einer raschen Zerstörung des Isomers führen. Eine signifikante  $s$ -Produktion von  $^{180}\text{Ta}$  könnte dann ausgeschlossen werden. Erste Hinweise auf ein niederenergetisches Mittlerniveau sind kürzlich durch Coulombanregungs-Experimente bekannt geworden [Sch94].

## Kapitel 2

# Neutroneneinfang am $^{179}\text{Ta}$

Typische s-Prozess Temperaturen betragen  $1\text{-}3\cdot 10^8\text{ K}$ , und das Neutronenspektrum entspricht einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung. Entsprechend werden die stellaren Querschnitte als Mittelwerte für eine thermische Energie von  $kT=30\text{ keV}$  angegeben. Theoretische Abschätzungen für den Maxwell-gemittelten Querschnitt von  $^{179}\text{Ta}$ , wurden von Holmes et al. [Hol76] und mit verbesserten Eingabedaten von Reffo et al. [Nem92] durchgeführt (vgl. Tab. 2.1). Sie unterscheiden sich signifikant und sind mit relativ großen Fehlern von 20-100% behaftet. Durch eine direkte Messung des stellaren Neutroneneinfangquerschnitts von  $^{179}\text{Ta}$  wäre es daher möglich, diese Unsicherheiten in der Produktionsrate zu reduzieren und so zu einer empfindlichen Aussage über die physikalischen Parameter beim s-Prozess zu kommen.

**Tab. 2.1:** Berechnete Einfangquerschnitte

	$\langle \sigma_{n,\gamma} (^{179}\text{Ta}) \rangle_{30\text{ keV}}$
Holmes et al.	3280 mb
Reffo et al.	1128 mb

Durch Bestrahlungen einer  $^{179}\text{Ta}$ -Probe im Reaktor besteht ferner die Möglichkeit über die niederenergetische (n, $\gamma$ )-Synthese zu einem besseren Verständnis der weitgehend unbekanntes Niveaustuktur von  $^{180}\text{Ta}$  beizutragen.

Bisherige Informationen über das Niveauschema von  $^{180}\text{Ta}$  wurden überwiegend aus Reaktionen mit geladenen Teilchen an  $^{181}\text{Ta}$  und aus dem  $\beta^-$ -Zerfall von  $^{180}\text{Hf}^m$  abgeleitet [NDS94]. Im  $\beta^-$ -Zerfall können aufgrund des Q-Wertes und der Auswahlregeln nur beschränkt Zustände im  $^{180}\text{Ta}$  besetzt werden. Reaktionen mit höherenergetischen Teilchen bevölkern Zustände im Produktkern mit unterschiedlichem Drehimpuls annähernd gleichmäßig. Dagegen können thermische s-Wellen-Einfänge am  $^{179}\text{Ta}$  ( $I = 7/2^+$ ) gezielter zu einer Population von Zuständen mit mittlerem Kernspin ( $I = 3\text{-}5$ ) führen, die zu weiteren Isomeren mit mittlerer K-Quantenzahl zerfallen können oder gar selbst Isomere darstellen. Die Existenz solcher Isomere erscheint im Hinblick auf den Isomerismus der Nachbarisotope und der großen K-Differenz zwischen Grundzustand und stabilen Isomer nicht unwahrscheinlich. Ein entsprechender Nachweis mit Hilfe einer reinen — und somit annähernd untergrundfreien —  $^{179}\text{Ta}$ -Probe sollte daher durchaus im Bereich des Möglichen sein.

Eine thermische Aktivierung erlaubt zudem die Kalibrierung des Messaufbaus für den stellaren Querschnitt und über die Kadmiumdifferenz-Methode auch eine Ermittlung des bisher unbekanntes Resonanzintegrals und des thermischen Einfangquerschnitts zum Grundzustand von  $^{180}\text{Ta}$ .

Solche Untersuchungen setzen eine geeignete  $^{179}\text{Ta}$ -Probe voraus. Daher wird zunächst auf die eigentliche Schwierigkeit des Experiments, der Probenpräparation, eingegangen. Die Messung des thermischen Querschnitts, des Resonanzintegrals, sowie die Untersuchung anderer Zerfallskanäle von  $^{180}\text{Ta}$  ist Thema des nächsten Unterkapitels. Die Messmethode und die Ergebnisse der Messung des stellaren Querschnitts, sowie deren Diskussion wird im letzten Unterkapitel geschildert.

## 2.1 Probenherstellung

Da  $^{179}\text{Ta}$  ein instabiler, im Handel nicht erhältlicher Kern ist, muss die Probe selbst hergestellt werden. Dabei wird zunächst eine ausreichende Menge an  $^{179}\text{Ta}$ -Kernen mittels Kernreaktionen produziert und anschließend vom Ausgangsmaterial und anderen radioaktiven Verunreinigungen abgetrennt.

### 2.1.1 Synthese von $^{179}\text{Ta}$

Die Grundlage für eine effektive Synthese von  $^{179}\text{Ta}$  mittels Kernreaktionen sind große Wirkungsquerschnitte und hohe Teilchenströme. Daher liegt es nahe,  $^{179}\text{Ta}$  über Reaktionen mit leichten Projektilen am Nachbarelement Hafnium darzustellen.

In einem ersten Versuch wurde über die (d,2n)-Reaktion an einer existierenden, in  $^{179}\text{Hf}$  angereicherten Oxid-Probe eine ausreichende Menge an  $^{179}\text{Ta}$  Kernen erzeugt. Es zeigte sich jedoch, dass neben der Aktivierung von Verunreinigungen im  $\text{HfO}_2$ , auch das chemisch nicht abtrennbare  $^{182}\text{Ta}$  via  $^{180}\text{Hf}(d,\gamma)$  gebildet wurde. Wegen der relativ langen Halbwertszeit von 114 d konnte diese Probe im Zeitrahmen der Doktorarbeit nicht weiter verwendet werden.

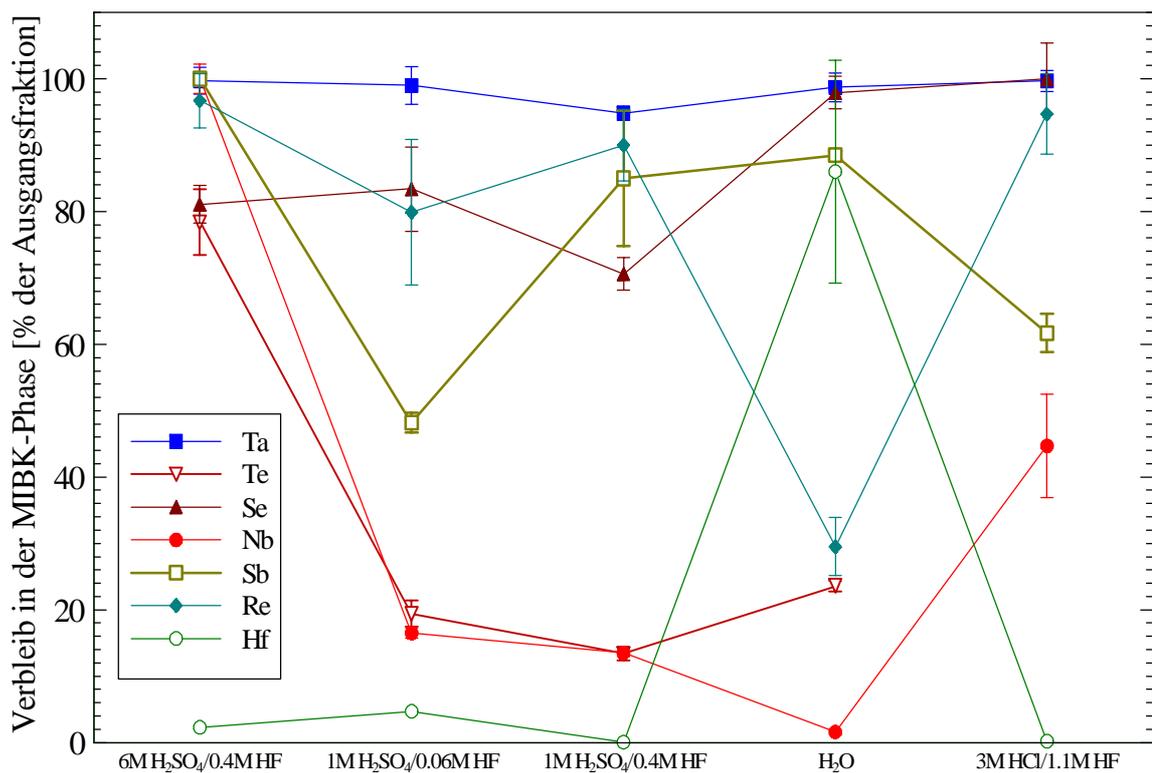
In einer erneuten Bestrahlung wurde dieses Problem dadurch gelöst, dass zum einen Protonen als Projektil und zum anderen metallisches Hafnium in natürlicher Isotopenhäufigkeit als Targetmaterial benutzt wurde. Das hat den Vorteil, dass *a)* das erheblich billigere Targetmaterial wegen der besseren Wärmeleitfähigkeit des Metalls größeren Strömen ausgesetzt werden konnte, *b)* mit protoneninduzierten Reaktionen kein langlebiges  $^{182}\text{Ta}$  erzeugt wurde und *c)* die (p,2n)-Reaktion zum  $^{179}\text{Ta}$  über das häufigste Hafnium-Isotop  $^{180}\text{Hf}$  mit großen Wirkungsquerschnitt verlief.

Die Bestrahlung wurde am Kompakt-Zyklotron (KAZ) des Forschungszentrums Karlsruhe durchgeführt. Das Target war eine 1 mm dicke wassergekühlte Hafnium Folie mit 1 cm Durchmesser, die mit Protonen (Einschussenergie 27 MeV, Austrittsenergie ca. 10 MeV) im Energiefenster des Maximums der (p,2n)-Reaktion für 12h bei 30 $\mu\text{A}$  bestrahlt wurde. Damit

konnten in der 1.3 g schweren Hf-Folie etwa  $1.4 \mu\text{g } ^{179}\text{Ta}$  synthetisiert werden, die im Folgenden aus der Hafniummatrix extrahiert werden mussten. Zuvor wurde die Aktivität anderer radioaktiver Beiprodukte durch eine siebenmonatige Wartezeit reduziert.

## 2.1.2 Chemische Trennung

Nach Ende der Abklingzeit finden sich in der Folie nur noch langlebigere ( $t_{1/2} > 20 \text{ d}$ ) Nuklide, die durch Reaktionen am Hafnium ( $^{175}\text{Hf}$ ,  $^{179}\text{Hf}$ ,  $^{181}\text{Hf}$ ,  $^{172}\text{Lu}$ ,  $^{173}\text{Lu}$ ,  $^{174}\text{Lu}$ ), am überaus häufigen (2%) Zirkon ( $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{88}\text{Zr}$ ,  $^{88}\text{Y}$ ,  $^{91}\text{Y}$ ,  $^{95}\text{Nb}$ ,  $^{91}\text{Nb}$ ), oder an anderen, zumeist leichteren, Verunreinigungen in der Folie ( $^{56}\text{Co}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{65}\text{Zn}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{184}\text{Re}$ ) gebildet wurden und Aktivitäten im Bereich  $10^4$ - $10^8 \text{ Bq}$  aufweisen. Um eine reine, untergrundfreie Aktivierungsprobe zu erhalten, muss  $^{179}\text{Ta}$  nicht nur mit besonders hohem Trennfaktor vom Hafnium, sondern auch von den anderen radioaktiven Nukliden getrennt werden.



**Abb. 2.1:** Verbleib in der MIBK-Phase von Hf, Re, Sb, Nb, Se, Te und Ta nach Spülung mit den entsprechenden wässrigen Lösungen. Die Angaben sind in Prozent der Ausgangsfraction. Die Fehlerbalken sind dominiert von den statistischen Fehlern bei der Bestimmung der  $\gamma$ -Linien.

### 2.1.2.1 Extraktionsverfahren, Vorversuche

In der Literatur sind unterschiedliche chemische Verfahren zur Trennung von Tantal und Hafnium beschrieben [Gme69], [Sch92], [Zim93], [Cal88]. Angesichts der benötigten hohen Trennfaktoren und der angestrebten Selektivität bieten flüssig-flüssig Extraktionsverfahren bei Wahl geeigneter Lösungsmittel die besten Voraussetzungen.

Bei der flüssig-flüssig Extraktion handelt es sich um ein Trennverfahren, bei dem das unterschiedliche Lösungsverhalten zweier Stoffe in miteinander nicht mischbaren Lösungsmitteln ausgenutzt wird. Es ergeben sich für die einzelnen Stoffe spezifische Verteilungsgleichgewichte, wobei die Löslichkeit durch die Polarität der Moleküle gegeben ist. Polare Moleküle lagern sich durch Ausbildung von H-Brücken an die Moleküle eines polaren Lösungsmittels an. Unpolare Moleküle mischen sich in unpolaren Lösungsmitteln durch Wirkung der Van der Waals Kräfte, es gilt: "Gleiches löst sich in Gleichem".

Basierend auf dem Verhalten der Tantalfluorid-Komplexe im flüssig-flüssig System Ketone  $\leftrightarrow$  wässrige Phase [Fri68], [Ste53], [Mil55], wurde das einfach erhältliche MIBK (Methylisobutylketon:  $\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}$ ) als organische (unpolare) Phase und eine HF enthaltende Säuremischung als polare Phase benutzt<sup>3</sup>. In Vorversuchen wurde das Extraktionsverhalten verschiedener Elemente, insbesondere Hafnium, im Scheidetrichter untersucht. Dabei wurde ein Teil der über die (d,2n)-Reaktion gebildeten  $^{179}\text{Ta}$ -Probe (siehe Kap. 2.1.1) samt Nebenprodukte in einer 6M  $\text{H}_2\text{SO}_4$  / 0.4M HF Säuremischung gelöst, anschließend in einem Scheidetrichter in die MIBK Phase übergeführt und die Verteilungskoeffizienten einzelner Elemente nach Spülung mit diversen wässrigen Phasen bestimmt. Aus der Messung der  $\gamma$ -Aktivitäten einzelner Nuklide ergibt sich der Verbleib in der MIBK Phase. Dabei werden die Aktivitäten im MIBK vor und nach der Spülung, sowie die Aktivitäten in der wässrigen Phase bestimmt.

Abb. 2.1 zeigt das Extraktionsverhalten der Elemente Hf, Re, Sb, Nb, Se, Te und Ta in Abhängigkeit von der wässrigen Phase. Man erkennt, dass das Extraktionsverhalten stark variiert und dabei nicht nur von der Art der wässrigen Phase, sondern auch kritisch von der Molarität der benutzten Säuremischung abhängt. Abgesehen von der Spülung mit  $\text{H}_2\text{O}$  findet man eine sehr konstante Verteilung von Tantal und Hafnium. Mit Tantal entstehen in der Säuremischung unpolare Fluorid-Komplexe, die so gut wie vollständig in der unpolaren organischen Phase verbleiben. Hafnium dagegen bildet in der Säuremischung Wasserstoffbrückenbindungen aus und wird fast vollständig aus dem MIBK ausgewaschen. Die anderen Elemente verhalten sich wesentlich differenzierter, wobei der Grad der Komplexbildung und somit das Extraktionsverhalten stark von der Molarität der Säuremischung abhängt (vgl. z.B. Nb). Das System 1M  $\text{H}_2\text{SO}_4$ /0.06M HF erwies sich als die am besten geeignetste wässrige Phase, um Tantal von den übrigen Elementen abzutrennen.

Abb. 2.1 zeigt auch, dass die gewünschten Trennfaktoren im Bereich  $10^5$  mit einer einzigen Spülung nicht erreicht werden können. Vielmehr müsste man obigen Schritt mehrmals wiederholen. Eleganter und erfolgreicher lässt sich dies mit Hilfe einer säulenchromatographischen Trennung durchführen.

<sup>3</sup> Im Gegensatz zu dem von Stevenson et al. [Stev53] benutzten DIPK, ist MIBK weniger löslich in wässriger Phase und auch leichter zu verdampfen und deshalb vorzuziehen.

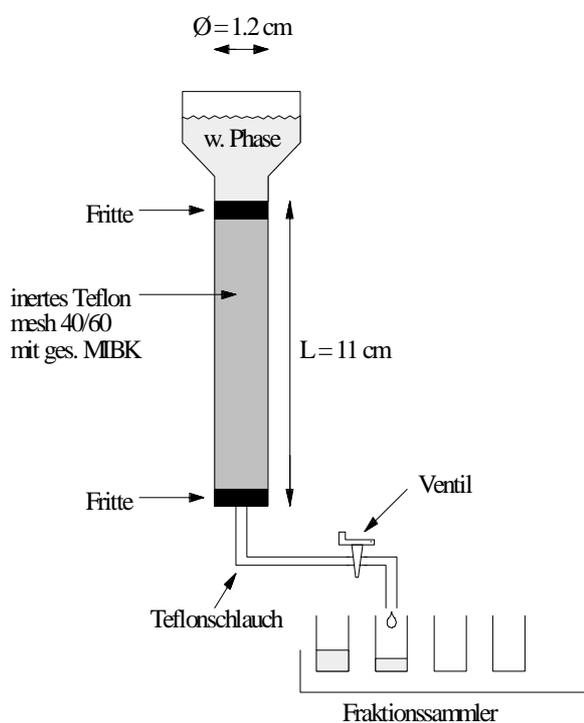
### 2.1.2.2 Säulenchromatographische Trennung

Unter Chromatographie versteht man eine Methode der Stofftrennung für analytische und präparative Zwecke basierend auf den Trennprinzipien Adsorption, Ionenaustausch und Verteilung.

Das Trennprinzip der hier verwendeten flüssig-flüssig Säulenchromatographie beruht, analog zur flüssig-flüssig Extraktion, auf den spezifischen Verteilungsgleichgewichten der zu trennenden Substanzen zwischen polarer und unpolare Phase. In der Umkehrphasen-Säulenchromatographie ist die unpolare Phase (MIBK) durch Adsorption an eine indifferente Trägersubstanz fixiert, die dann in eine Säule eingefüllt wird („stationäre Phase“). Die polare Phase („mobile Phase“) fließt an der stationären entlang, so dass die Verteilungsgleichgewichte gestört werden und sich ständig neu einstellen müssen. Damit entspricht die säulenchromatographische Trennung einer Hintereinanderschaltung vieler einzelner Ausschüttelschritte mit dem Scheidetrichter.

#### Aufbau

Abb. 2.2 zeigt den Aufbau der säulenchromatographischen Trennung. Alle Komponenten sind aus flusssäurebeständigem Material. Die Trennsäule ( $\varnothing = 15 \text{ mm}$ ) besteht aus einer 11 cm langen, mit der stationären Phase gepackten Polypropylen-Säule. Die stationäre Phase ist realisiert durch einen dünnen, auf Teflonkügelchen aufgezogenen MIBK-Film.



**Abb. 2.2:** Aufbau für die säulenchromatographische Trennung. Das MIBK befindet sich stationär auf der Säule. Die wässrige, radioaktive Phase läuft gravitativ mit geringer Fließgeschwindigkeit durch die Säule und wird anschließend in 1 - 5 ml Fraktionen gesammelt.

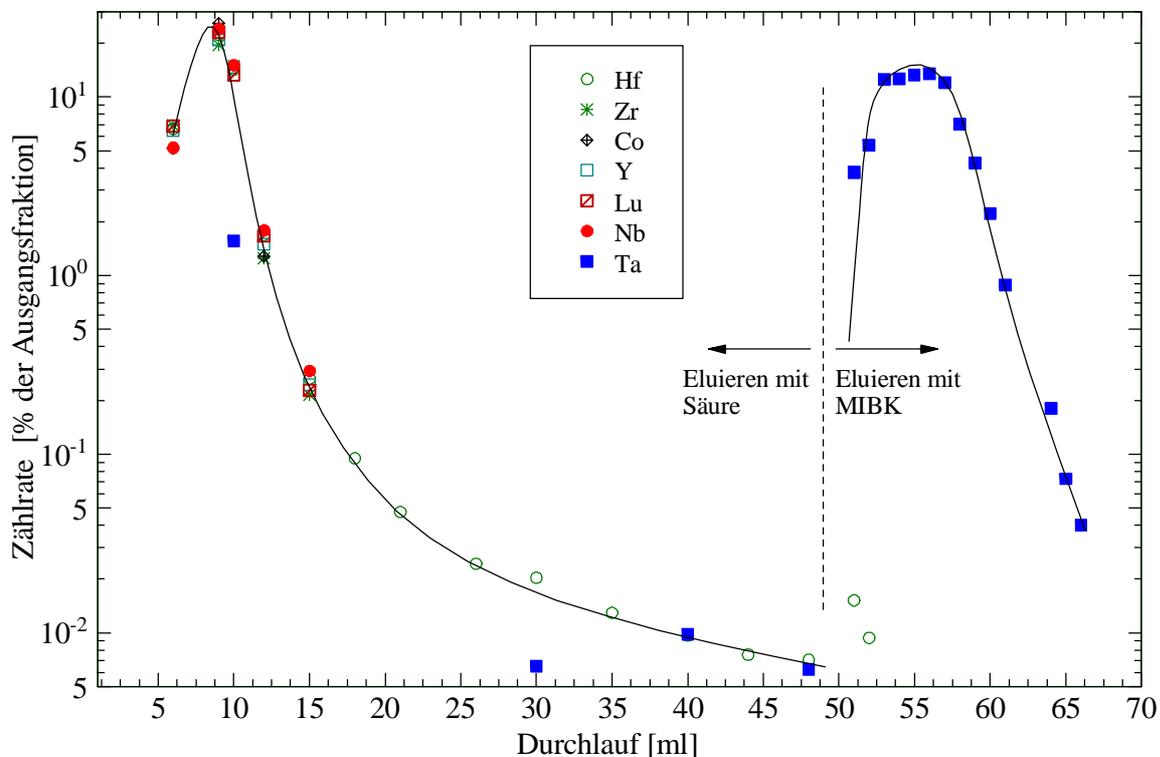
Der Säulenauslauf führt mittels Teflonschläuchen und -ventil zu den fraktions-sammelnden Polypropylenbehältern. Die mobile Phase (Schwefelsäure-Flusssäuregemisch) läuft gravitativ durch die Säule, wobei die Fließgeschwindigkeit durch das Auslaufventil gesteuert wird. Das durchgelaufene Fließmittel wird in 1-5 ml Fraktionen gesammelt. Anschließend werden die  $\gamma$ -Aktivitäten der radioaktiven Konstituenten der einzelnen Fraktionen mit Hilfe eines HPGe-Detektors bestimmt.

Fertig gepackte Säulen sind für diese Trennung im Handel nicht erhältlich und müssen daher präpariert werden. Als Träger für die stationäre MIBK-Phase wird inertes Teflonpulver (Chromosorb T der Firma Supelco, mesh 40/60) verwendet. Das gekaufte Pulver zeigt allerdings — je nach Lagerungszustand — Agglomerate, die elektrostatisch oder aufgrund von Wärmeeinwirkung entstehen. Die elektrostatischen Agglomerate werden durch Waschen mit Azeton gelöst, anschließend luftgetrocknet und die verbleibenden

(wärmebedingten) Klumpen heraus gesiebt. Das so erhaltene feine Pulver wird für ca. 10-30 min in gesättigtem MIBK suspendiert und danach gleichmäßig, um eine homogene Packung der Säule zu erhalten, mit dem MIBK in die leere Säule (Fa. Biorad) transferiert. Daraufhin lässt man die Säule für etwa 1-2 Stunden stehen, damit sich das Säulenmaterial gravitativ absetzen kann. Als Abschluss und Schutz der Packung wird eine Fritte aufgelegt. Das überschüssige, nicht am Teflon haftende MIBK wird nun langsam (Fließgeschwindigkeit ca. 0.2 ml/min) abgelassen und durch die wässrige Phase (1M  $\text{H}_2\text{SO}_4/0.06\text{M HF}$ ) ersetzt. Die Säule ist jetzt fertig gepackt und kann zur Trennung verwendet werden.

### Trennung

Die bestrahlte Hf-Folie wird in 6M  $\text{H}_2\text{SO}_4/0.4\text{M HF}$  unter Wärmezufuhr und erneuter Zugabe konzentrierter  $\text{H}_2\text{SO}_4$  gelöst und anschließend zu 1M  $\text{H}_2\text{SO}_4/0.06\text{M HF}$  verdünnt. Die sich ergebende radioaktive Säuremischung wird auf die Säule aufgetragen und das Auslaufventil der Säule auf einen konstanten Fluss von etwa 0.2 ml/min eingestellt. Nach Durchlauf der radioaktiven Phase verbleiben im Wesentlichen nur Tantal und Spuren anderer Elemente im MIBK der Säule. Im Anschluss an die radioaktive Phase wird mit MIBK gesättigter 1M  $\text{H}_2\text{SO}_4/0.06\text{M HF}$  eluiert, so dass die teilweise ins MIBK übergegangenen Verunreinigungen von der Säule gespült werden der Trennfaktor weiter erhöht wird. Zum Schluss wird Tantal mit reinem MIBK eluiert.



**Abb. 2.3:** Ergebnis der säulenchromatographischen Trennung mit 1M  $\text{H}_2\text{SO}_4/0.06\text{M HF}$ . Die Trennung wurde mit 3 ml radioaktiver Säuremischung durchgeführt. Die durchgezogenen Linien verdeutlichen den Verlauf.

Der Verlauf einer solchen Trennung ist in Abb. 2.3 dargestellt. Die Datenpunkte repräsentieren die  $\gamma$ -Aktivität der 1 ml-Fractionen in Prozent der Ausgangsfraction. Die Fehlerbalken sind aufgrund der Übersichtlichkeit weggelassen, liegen aber je nach Element im Bereich 1-20%.

Man erkennt deutlich, dass *a)* Hafnium und alle anderen detektierbaren Elemente sich chemisch analog verhalten, von der Säule kaum festgehalten werden und mit der Ausgangsfraction die Säule wieder verlassen, *b)* die weitere Elution den Trennfaktor deutlich verbessert, der dann aber bei  $\approx 10^{-2}$  % in Sättigung geht und *c)* nur wenig Tantal durch die Elution mit der wässrigen Phase von der Säule gespült wird, die Extraktion mit MIBK dagegen sehr effektiv verläuft.

Die Tantal-Ausbeute (der Bruchteil an Tantal-Atomen, der mittels dieser Trennung aus der Ausgangsfraction extrahiert wird) liegt bei 80-90%. Weitere Vorversuche haben gezeigt, dass diese Ausbeute durch Erhöhung der Flusssäurekonzentration in der wässrigen Phase noch weiter gesteigert werden kann, man dafür aber etwas schlechtere Trennfaktoren erhält.<sup>4</sup> Neben anderen kritischen Faktoren, wie z.B. dem homogenen Packen der Säule oder der Molarität der Schwefelsäure, spielt der Sättigungscharakter der Säule eine Rolle. Bei großen radioaktiven Ausgangsfractionen (>30 ml) ist die stationäre Phase aufgrund der limitierten Oberfläche nicht mehr in der Lage, weitere Moleküle aus der wässrigen Phase festzuhalten; die Ausbeute sinkt als Folge stark ab.

Als Ergebnis dieser Trennmethode konnten aus 61 ml radioaktiver Ausgangsfraction in zwei Trennschritten  $7.5 \cdot 10^{14}$   $^{179}\text{Ta}$ -Kerne<sup>5</sup> extrahiert werden. Dabei ergaben sich die in Tab. 2.2 aufgelisteten, sehr hohen Trennfaktoren, welche durch Vergleich der  $\gamma$ -Aktivitäten von Ausgangs- und Endfraction ermittelt wurden. Die nur geringe zurückbleibende Hf-Aktivität (36 Bq) konnte durch weiteres Auswaschen der MIBK Fraction im Scheidetrichter um 70% reduziert werden. Das chemische Trennverfahren entsprach somit den gestellten Reinheitsanforderungen.

### 2.1.3 Probenträger

Das Ziel der Probenpräparation war, eine für die Aktivierungsmessung geeignete Probe herzustellen, wobei die  $^{180}\text{Ta}$ -Aktivität anhand der Konversionselektronen ermittelt werden sollte (vgl. Kap. 2.3.2). Aufgrund der nur mit niedriger Energie (80-90 keV) emittierten

**Tab. 2.2: Erzielte Trennfaktoren.**

Element	erzielter Trennfaktor
Hf	$6.2 \cdot 10^5$
Zr	$> 7.8 \cdot 10^3$
Co	$> 3.4 \cdot 10^3$
Y	$> 2.5 \cdot 10^4$
Lu	$> 2.5 \cdot 10^4$
Nb	$> 3.3 \cdot 10^4$
Re	$> 1.4 \cdot 10^4$

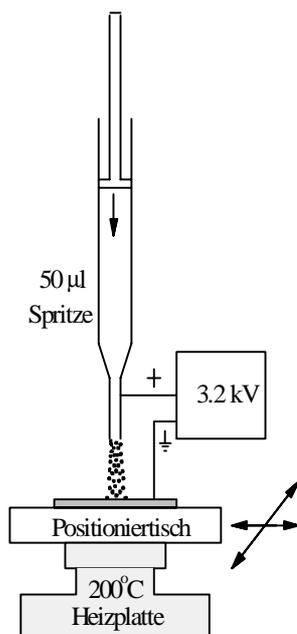
<sup>4</sup> Eine Erhöhung der HF-Konzentration auf 1M resultiert in einer deutlichen Veränderung des Elutionsverhaltens des Niob. Niob geht wesentlich stärker in die MIBK-Phase über und wird erst später eluiert.

<sup>5</sup> Die Zahl ergibt sich aus der  $^{179}\text{Ta}$ -Eigenaktivität, siehe auch weiter unten im Text.

Elektronen aus dem EC-Zerfall von  $^{180}\text{Ta}$  (siehe Tab. 2.5 auf S. 27) sollten innerhalb der Probe keine nennenswerten Energieverluste auftreten.

Die aus der Trennung erhaltenen 223 ng  $^{179}\text{Ta}$  reichten für die Herstellung einer selbsttragenden Probe nicht aus und wurden daher auf eine 0.125 mm dicke Aluminiumfolie (Reinheit 99.999 %) aufgebracht. Aluminium wurde gewählt, da *a*) durch Aktivierung im quasistellaren Neutronenspektrum keine nennenswerte Untergrundaktivitäten erzeugt werden, *b*) die Folie bei der verwendeten Dicke mechanisch stabil ist, das Neutronenspektrum aber nicht verändert und *c*) Aluminium als Metall elektrisch leitfähig und hitzebeständig ist. Letzteres ist Voraussetzung für das Aufbringen der  $^{179}\text{Ta}$ -Kerne auf den Träger.

Die  $^{179}\text{Ta}$ -Kerne befinden sich nach der Trennung in 13.2 ml MIBK. Ein einfaches Auftropfen der Kerne auf den Träger ist nicht möglich, da das unpolare MIBK auf dem Al-Träger keine Tropfen ausbildet und damit selbst bei kleinsten Mengen eine zu große Fläche unkontrolliert benetzt wird. Um eine homogene Flächenprobe ( $\varnothing < 10$  mm) zu erhalten, wurde daher das von Carswell et al. entwickelte *Elektrosprüh-* Verfahren [Lal84] verwendet.



**Abb. 2.4:** Aufbringen der  $^{179}\text{Ta}$ -Kerne nach dem Elektrosprüh-Verfahren.

Bei diesem Verfahren wird das  $^{179}\text{Ta}$  enthaltende MIBK elektrostatisch zerstäubt und so auf den Träger aufgesprüht. Die Anordnung dazu ist in Abb. 2.4 dargestellt. Die metallische Nadel einer mit MIBK gefüllten 50 µl Spritze (5-10 mm Abstand vom Probenträger) ist auf eine positive Hochspannung von 3.2 kV gegenüber dem Probenträger (Masse) gelegt. Wird der Stempel der Spritze mit einer Mikrometerschraube langsam nach unten gefahren, so spaltet sich das an der Nadel austretende, geladene MIBK in feine Partikel auf, die dann zur Masse hin beschleunigt werden. Ein Teil des MIBK verdampft dabei auf der Wegstrecke, der Rest schlägt sich auf dem Träger lokalisiert in kleinen Bereichen ( $\varnothing \approx 2$  mm) nieder und kann dort durch Erhitzen des Al-Trägers weiter abgedampft werden.<sup>6</sup> Um eine homogene Verteilung der  $^{179}\text{Ta}$ -Atome zu bekommen, wird eine kleine Fläche ( $\varnothing \approx 10$  mm) des Probenträgers durch einen mit Mikrometerschrauben beweglichen Positioniertisch gleichmäßig belegt.

Nach Abdampfen der Rückstände des MIBK wird der Al-Träger auf den gewünschten Durchmesser (siehe Tab. 2.3) ausgestanzt und, um Verluste von  $^{179}\text{Ta}$ -Atomen zu vermeiden, mit einer dünnen ( $20 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ) Kohlenstoffolie überdeckt.

Auf diese Weise wurden zwei  $^{179}\text{Ta}$ -Proben hergestellt, deren Charakteristika in Tab. 2.3 zusammengefasst sind. Die Eigenaktivität der Probe,  $A(^{179}\text{Ta})$ , ist durch den Mittelwert aus der Detektion der beim  $^{179}\text{Ta}$ -Zerfall ausgesandten  $K_\alpha$

<sup>6</sup> Beim herkömmlichen Elektrosprüh-Verfahren wird das Lösungsmittel bei Anlegen der Spannung aus der Spritze gesaugt und auf der Wegstrecke völlig verdampft. In diesem Punkt zeigt sich das verwendete MIBK etwas problematischer.

und  $K_\beta$  Röntgenlinien gegeben (vgl. Tab. 2.4 auf S. 27). Aus der Aktivität folgt über die Zerfallskonstante die Zahl der  $^{179}\text{Ta}$ -Kerne und daraus die Probenmasse. Die Fehler für  $A(^{179}\text{Ta})$  und  $^{179}\text{N}$  errechnen sich aus den Unsicherheiten der absoluten Linienintensitäten, der Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors und der Halbwertszeit (vgl. Kap. 2.2.3).

Bei den Bemühungen, das Volumen der 13.2 ml MIBK Fraktion für obiges Verfahren zu reduzieren, traten Probleme auf. Durch Temperaturzufuhr beim Abdampfen bildeten sich extrem stabile Komplexverbindungen (vermutlich Tantal-Komplexe), die sich anfänglich durch eine braungelbe, später durch eine schwarze Verfärbung des sonst farblosen MIBK äußerten. Nach vollständiger Eintrocknung verblieben feste Rückstände, die aber nach 16 d bei 200°C auf der Heizplatte abgedampft werden konnten. Vorangegangene Versuche, die festen Rückstände im Ultraschallbad oder mittels stark oxidierender Säuren bzw. Säuregemischen (30%  $\text{H}_2\text{O}_2$ , 40% HF, 96%  $\text{H}_2\text{SO}_4/30\% \text{H}_2\text{O}_2$ ) zu reduzieren, scheiterten und führten zu einem erheblichen Verlust in der Ausgangsfraktion. So konnten letzten Endes nur 10% der abgetrennten  $^{179}\text{Ta}$ -Kerne auf den beiden Probenträgern aufgebracht werden.

**Tab. 2.3:** Hergestellte  $^{179}\text{Ta}$ -Proben.

Probe	Ø	$A(^{179}\text{Ta})$ in Bq	$^{179}\text{N}$	Probenmasse	Referenzdatum	Verwendung
TA1	8 mm	$1.50(2) \cdot 10^5$	$1.25(8) \cdot 10^{13}$	3.71 ng	19.11.96	thermische Aktivierung
TA2	10 mm	$9.07(15) \cdot 10^5$	$7.52(20) \cdot 10^{13}$	22.4 ng	22.11.96	epithermische und quasistellare Aktivierung

## 2.2 Thermische Aktivierung

### 2.2.1 Die Kadmiumdifferenz-Methode

Das Neutronenspektrum von Kernreaktoren lässt sich in drei verschiedene Energiebereiche aufteilen: dem *schnellen Fluss* ( $> 0.5 \text{ MeV}$ ), bestehend aus den energiereichen Neutronen der Kernspaltung, dem *epithermischen Fluss*, (0.2 eV - 0.5 MeV), der einem 1/E-Bremspektrum (Fermi-Verteilung) entspricht und dem *thermischen Fluss* ( $< 0.2 \text{ eV}$ ), der durch eine Maxwell-Boltzmann Verteilung wiedergegeben werden kann. Der schnelle Fluss spielt aufgrund der in diesem Energiebereich kleinen Einfangquerschnitte eine untergeordnete Rolle und kann daher außer Acht gelassen werden. Das für Neutroneneinfang relevante Neutronenspektrum ergibt sich somit durch Superposition von thermischer und epithermischer Verteilung zu:

$$\begin{aligned}\Phi(E) dE &= \Phi_{\text{th}}(E) dE + \Phi_{\text{epi}}(E) dE \\ &= \Phi_{\text{th}} \frac{E}{(kT_0)^2} e^{-\frac{E}{kT_0}} dE + \Phi_{\text{epi}} \frac{\Delta(E)}{E} dE\end{aligned}$$

mit

- $\Phi_{\text{th}} = \int \Phi_{\text{th}}(E) dE$ , dem integralen thermischen Neutronenfluss,
- $\Phi_{\text{epi}}$ , dem epithermischen Neutronenfluss pro logarithmischem Energieintervall,
- $\Delta(E)$ , der sogenannten „joining function“; sie schneidet das  $1/E$ -Bremspektrum beim Übergang in das thermische zwischen 0.1 und 0.4 eV ab. Bei dieser Energie spricht man auch vom „Cut Off“ des epithermischen Spektrums [Mug84].
- $T_0$ , der thermischen Neutronentemperatur. Thermische Wirkungsquerschnitte,  $\sigma_0$ , sind standardmäßig für  $T_0 = 20.44^\circ\text{C}$  angegeben, was einer Neutronenenergie von  $E_0 = kT_0 = 0.0253\text{ eV}$  entspricht.

Wird eine Probe einem solchen Reaktorspektrum ausgesetzt, so ist die Aktivierung  $C$ , d.h. die Zahl der durch  $(n,\gamma)$ -Reaktionen aktivierten Kerne pro Zeiteinheit und Targetkern, gegeben durch

$$\begin{aligned}C = \frac{N_{\text{akt}}}{N_{\text{Target}}} &= \int_0^\infty \sigma(E) \cdot \Phi(E) dE \\ &= \int_0^\infty \sigma(E) \cdot \Phi_{\text{th}}(E) dE + \int_0^\infty \sigma(E) \cdot \Phi_{\text{epi}}(E) dE \\ &= \Phi_{\text{th}} \cdot \int_0^\infty \sigma(E) \frac{E}{(kT_0)^2} e^{-\frac{E}{kT_0}} dE + \Phi_{\text{epi}} \cdot \int_0^\infty \sigma(E) \frac{\Delta(E)}{E} dE \\ &= \Phi_{\text{th}} \cdot \sigma_{\text{th}} + \Phi_{\text{epi}} \cdot \sigma_{\text{epi}}.\end{aligned}\tag{2.1}$$

Hier ist  $\sigma_{\text{th}} = \int_0^\infty \sigma(E) \frac{E}{(kT_0)^2} e^{-\frac{E}{kT_0}} dE$  der Maxwell-gemittelte thermische Wirkungsquerschnitt und  $\sigma_{\text{epi}} = \int_0^\infty \sigma(E) \frac{\Delta(E)}{E} dE$  der Mittelwert des Wirkungsquerschnitts im epithermischen Bereich.

Um den thermischen Wirkungsquerschnitt von  $^{179}\text{Ta}$  zu bestimmen, muss daher der epithermische Anteil zur Aktivierung bekannt sein. Er lässt sich durch die Kadmiumdifferenzmethode [Bek64] ermitteln. Dabei wird die Probe einmal „nackt“ und einmal unter einem 1 mm dicken Cd-Absorber im Reaktor bestrahlt. Infolge des hohen Absorptionsquerschnitts von Cd unterhalb 0.5 eV ist Cd für thermische Neutronen praktisch undurchlässig, epithermische Neutronen werden dagegen kaum absorbiert. Somit trägt in Gleichung (2.1) nur der

epithermische Anteil zur Aktivierung bei und kann bei bekanntem Neutronenfluss bestimmt werden. Der thermische Anteil ergibt sich dann als Differenz zwischen der Aktivierung ohne und mit Absorber gemäß:

$$C_{\text{th}} = C - F_{\text{Cd}} C_{\text{Cd}} \quad (2.2)$$

mit  $C_{\text{Cd}} = \Phi_{\text{epi}} \cdot I_{\text{res}}$  und  $I_{\text{res}} = \int_{E_{\text{Cd}}}^{\infty} \sigma(E) \frac{\Delta(E)}{E} dE$ , des aufgrund der Resonanzstruktur des Wirkungsquerschnitts benannten Resonanzintegrals<sup>7</sup> [Bek64], [Ben68]. In Gleichung (2.2) wurde noch der Korrekturfaktor  $F_{\text{Cd}}$  eingefügt, welcher berücksichtigt, dass Kadmium auch Neutronen zwischen der Abschneideenergie des epithermischen Spektrums ( $\approx 0.1$  eV) und der Cd-Abschneideenergie absorbiert.  $E_{\text{Cd}}$  ist dabei definiert als die effektive Abschneideenergie, die einem idealen Filter (Stufenfunktion) entsprechen würde, welcher unterhalb  $E_{\text{Cd}}$  total absorbiert und oberhalb die gleiche Zahl an absorbierten Neutronen aufweist wie der gegebene Cd-Filter. Sie ist abhängig von der Dicke und Geometrie des Cd-Absorbers und liegt zwischen 0.5 und 0.7 eV. Gleichermaßen ist auch  $F_{\text{Cd}}$  abhängig von der Dicke und Geometrie des Cd-Absorbers, sowie von der joining function, dem Verlauf des Wirkungsquerschnitts und der Dicke der Folie der zu messenden Substanz. In der Regel liegen die Resonanzen im Einfangquerschnitt weit oberhalb dieses Energieintervalls, so dass nur der  $1/v$ -Anteil am Resonanzintegral von der Korrektur betroffen ist. Resultiert zudem der überwiegende Teil der Einfänge aus den Resonanzen, so wird  $F_{\text{Cd}}$  entsprechend klein und nimmt für einen 1 mm Cd-Absorber und infinitesimal dünne Folien typischerweise Werte von 1.0 - 1.10 an [Nim81], [Sim84].

Umformen der Gleichung (2.2) liefert

$$\begin{aligned} \frac{C_{\text{th}}}{C_{\text{Cd}}} &= \frac{C}{C_{\text{Cd}}} - F_{\text{Cd}} \\ \frac{\Phi_{\text{th}}}{\Phi_{\text{epi}}} \cdot \frac{\sigma_{\text{th}}}{I_{\text{res}}} &= R_{\text{Cd}} - F_{\text{Cd}} \\ \sigma_{\text{th}} &= \frac{\Phi_{\text{epi}}}{\Phi_{\text{th}}} \cdot (R_{\text{Cd}} - F_{\text{Cd}}) \cdot I_{\text{res}} \end{aligned} \quad (2.3)$$

Das Verhältnis der Aktivierung ohne und mit Absorber,  $R_{\text{Cd}} = C/C_{\text{Cd}}$ , wird Kadmium-verhältnis genannt und ist eine einfach zu messende Größe. Bei bekanntem Flussverhältnis kann somit  $\sigma_{\text{th}}/I_{\text{res}}$  bestimmt werden. Der thermische Einfangquerschnitt ergibt sich aus Kenntnis des Resonanzintegrals, das aus der (epithermischen) Bestrahlung unter dem Cd-Absorber gemäß

$$C_{\text{Cd}} = \Phi_{\text{epi}} \cdot I_{\text{res}} \quad (2.4)$$

<sup>7</sup> Das Resonanzintegral  $I_{\text{res}}$  enthält in dieser Definition auch den  $1/v$ -Anteil am Aktivierungsintegral. Eine exakte Definition ist durch das Festlegen der Integrationsgrenzen auf 0.55 eV und 2 MeV gegeben. Literaturwerte sind immer in Bezug auf diese Grenzen angegeben (siehe auch unter Kap. 7.2.2.3 Ergebnisse).

errechnet werden kann. Um die Flüsse in Gleichung (2.3) und (2.4) zu bestimmen, wird ein geeigneter Monitor mitbestrahlt, und man erhält die Einfangquerschnitte relativ zu den Querschnitten des Monitors:

$$\sigma_{\text{th}}^{179\text{Ta}} = \frac{(R_{\text{Cd}} - F_{\text{Cd}})^{179\text{Ta}}}{(R_{\text{Cd}} - F_{\text{Cd}})^{\text{Mon}}} \cdot \left( \frac{\sigma_{\text{th}}}{I_{\text{res}}} \right)^{\text{Mon}} \cdot I_{\text{res}}^{179\text{Ta}} \quad (2.5)$$

$$I_{\text{res}}^{179\text{Ta}} = \frac{C_{\text{Cd}}^{179\text{Ta}}}{C_{\text{Cd}}^{\text{Mon}}} \cdot I_{\text{res}}^{\text{Mon}} \quad (2.6)$$

Verwendet man mehrere Monitore, die ein stark unterschiedliches  $\sigma_{\text{th}}/I_{\text{res}}$  aufweisen, ist man nicht nur in der Lage, den Fehler in der Bestimmung des Flussverhältnisses zu reduzieren, sondern man hat auch eine Möglichkeit, Änderungen in Bezug auf die Thermalisierung des Neutronenspektrums zwischen thermischer und epithermischer Bestrahlung nachzuweisen. Im gegebenen Fall wurden Monitore aus Gold und Kobalt verwendet.

Die Gleichungen (2.5) und (2.6) sind allerdings nur für infinitesimal dünne Folien gültig. Bei Verwendung von Folien endlicher Dicke wird der Neutronenfluss infolge von Selbstabsorption und Flussdepression verändert. In die Gleichungen für  $C_{\text{th}}$  und  $C_{\text{Cd}}$  müssen daher noch Korrekturfaktoren eingebracht werden, die diese Störungen berücksichtigen:

$$C_{\text{Cd}} = G_{\text{epi}} \cdot \Phi_{\text{epi}} \cdot I_{\text{res}}, \quad (2.7)$$

$$C_{\text{th}} = G_{\text{th}} \cdot F_{\text{th}} \cdot \Phi_{\text{th}} \cdot \sigma_{\text{th}},$$

mit

- $G_{\text{th,epi}} \leq 1$ , den Korrekturfaktoren für die Selbstabschirmung im thermischen und im epithermischen Neutronenfluss. Bei einer nicht infinitesimal dünnen Folie werden innere Schichten der Folie durch äußere abgeschirmt, der effektive Fluss, den die Folie somit sieht, ist entsprechend geringer.
- $F_{\text{th,epi}} \leq 1$ , den Korrekturfaktoren für die Flussdepression im thermischen, die durch Neutronenabsorber (hier Al, Au, Co) in der Umgebung der zu untersuchenden Folie verursacht wird (vgl. Abb. 2.5). Die Korrekturfaktoren können näherungsweise abgeschätzt [Ben68] und unter Berücksichtigung der Geometrie und der verwendeten Folien-dicken vernachlässigt werden ( $F_{\text{th}} = 1$ ).

Damit werden (2.5) und (2.6) zu

$$\sigma_{\text{th}}^{179\text{Ta}} = \frac{\left( \frac{G_{\text{epi}}}{G_{\text{th}} \cdot F_{\text{th}}} \right)^{179\text{Ta}}}{\left( \frac{G_{\text{epi}}}{G_{\text{th}} \cdot F_{\text{th}}} \right)^{\text{Mon}}} \cdot \frac{(R_{\text{Cd}} - F_{\text{Cd}})^{179\text{Ta}}}{(R_{\text{Cd}} - F_{\text{Cd}})^{\text{Mon}}} \cdot \left( \frac{\sigma_{\text{th}}}{I_{\text{res}}} \right)^{\text{Mon}} \cdot I_{\text{res}}^{179\text{Ta}} \quad (2.8)$$

$$I_{\text{res}}^{179\text{Ta}} = \frac{C_{\text{Cd}}^{179\text{Ta}}}{C_{\text{Cd}}^{\text{Mon}}} \cdot \frac{G_{\text{epi}}^{\text{Mon}}}{G_{\text{epi}}^{179\text{Ta}}} \cdot I_{\text{res}}^{\text{Mon}} \quad (2.9)$$

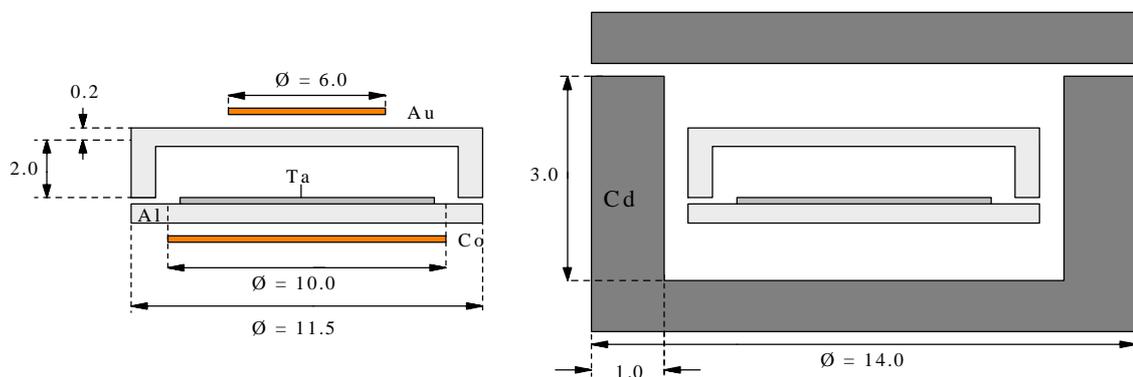
Einsetzen von (2.9) in (2.8) liefert

$$\sigma_{\text{th}}^{179\text{Ta}} = \frac{(G_{\text{th}} \cdot F_{\text{th}})^{\text{Mon}}}{(G_{\text{th}} \cdot F_{\text{th}})^{179\text{Ta}}} \cdot \frac{(R_{\text{Cd}} - F_{\text{Cd}})^{179\text{Ta}}}{(R_{\text{Cd}} - F_{\text{Cd}})^{\text{Mon}}} \cdot \frac{C_{\text{Cd}}^{179\text{Ta}}}{C_{\text{Cd}}^{\text{Mon}}} \cdot \sigma_{\text{th}}^{\text{Mon}} \quad (2.10)$$

Die Gleichungen (2.8), (2.9) und (2.10) bilden die Basis für die experimentelle Bestimmung für  $(I_{\text{res}}/\sigma_{\text{th}})^{179\text{Ta}}$ ,  $I_{\text{res}}^{179\text{Ta}}$  und  $\sigma_{\text{th}}^{179\text{Ta}}$ .

## 2.2.2 Aktivierung im Reaktor

Die  $^{179}\text{Ta}$ -Proben (TA1 und TA2) wurden am Triga Mark I Reaktor des Deutschen Krebsforschungszentrums in Heidelberg einmal ohne und zweimal mit Cd-Absorber (0.5, 1.0 mm) im zentralen Bestrahlungsrohr (ZBR) ( $\Phi_{\text{th}} \approx 10^{13} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ ) für 13-14 h bestrahlt. Die linke Seite in Abb. 2.5 zeigt den Aufbau der  $^{179}\text{Ta}$ -Probe ohne Absorber. Die  $^{179}\text{Ta}$ -Kerne befinden sich auf einer Al-Trägerfolie (vgl. Kap. 2.1). Auf die Trägerfolie ist ein Zylinder aus Aluminium ( $\text{Ø}=12 \text{ mm}$ , 2 mm Höhe, 0.2 - 0.5 mm Wandstärke) aufgebracht, um die empfindliche Probe vor mechanischen Einwirkungen zu schützen. Zylinder und Träger bilden zusammen ein Töpfchen, auf dessen Außenseiten von Deckel und Boden die zur Bestimmung des Neutronenflusses dienenden Monitorfolien aufgebracht sind. Pro Bestrahlung werden eine 0.01 mm dicke Gold- ( $\text{Ø}=6 \text{ mm}$ ) und eine 0.01 mm dicke Kobaltfolie ( $\text{Ø}=10 \text{ mm}$ ) verwendet. Die rechte Seite in Abb. 2.5 zeigt den Probenaufbau mit Cd-Absorber. Die Probe



**Abb. 2.5:** Aufbau der Bestrahlungsprobe für die Bestrahlungen im Reaktor. Links: ohne -, rechts: mit 1 mm Cd-Absorber. Alle Angaben sind in Millimeter gegeben.

selbst hat den gleichen Aufbau wie bei der ersten Bestrahlung. Der Cd-Absorber ist ein geschlossener Zylinder ( $\varnothing=14$  mm, 3 mm Höhe) mit 0.5 mm oder 1.0 mm Wandstärke. Anschließend werden die gezeigten Proben wasserdicht in einen Polyäthylenbehälter eingeschweißt.

Die Eingabedaten der Gleichungen (2.8), (2.9) und (2.10) ergeben sich folgendermaßen:

### Korrekturfaktoren:

Aufgrund der geringen Probenmasse von  $^{179}\text{Ta}$  gilt:  $G_{\text{th,epi}}(\text{Ta}) = 1$ . Da Gold häufig als Standard für Flussmessungen verwendet wird, findet man sowohl theoretische als auch experimentelle Werte in der Literatur [Alb62], [Bro63], [Bek64]. Im vorliegenden Fall ist  $G_{\text{epi}}(\text{Au}) = 0.51$  und  $G_{\text{th}}(\text{Au}) = 0.98$ . Für Kobalt ist man auf theoretische Werte beschränkt [Yam65]. Die thermische Korrektur kann vernachlässigt werden, für die epithermische Korrektur findet man  $G_{\text{epi}}(\text{Co}) = 0.83$  in guter Übereinstimmung mit dem gemessenen Wert (0.85)<sup>8</sup>.

### $F_{\text{Cd}}$ -Werte:

Die  $F_{\text{Cd}}(\text{Au,Co})$ -Werte sind aus der Literatur [Bek64], [Sim84] entnommen.  $F_{\text{Cd}}^{\text{Ta}}$  lässt sich aufgrund des unbekanntes Verlaufes des Einfangquerschnitts nicht bestimmen. Berücksichtigt man, dass die epithermische Aktivierung von  $^{179}\text{Ta}$  überwiegend durch Resonanzabsorption erfolgt<sup>9</sup> und die Resonanzen weit oberhalb der Cd-Abschneideenergie liegen<sup>10</sup> kann  $F_{\text{Cd}} = 1$  gesetzt werden.

### Wirkungsquerschnitte:

Die thermischen Wirkungsquerschnitte und Resonanzintegrale der Monitore erhält man aus der Literatur:  $\sigma_{\text{th}}(\text{Co}) = 37.18$  (6) b,  $I_{\text{res}}(\text{Co}) = 74.0$  (13) b,  $\sigma_{\text{th}}(\text{Au}) = 98.65$  (10) b,  $I_{\text{res}}(\text{Au}) = 1550$  (25) b [Mug84], [Sim84].

### Aktivierung:

Die Aktivierung  $C$  am Ende einer Bestrahlung berechnet sich aus ( $i = \text{Au, Co, Ta}$ ):

$$C^i = \frac{N_{\text{akt}}^i}{N_{\text{Target}}^i \cdot t_{\text{irr}} \cdot f_{\text{b}}^i} \quad .$$

Die Korrekturfaktoren für die während der Bestrahlung zerfallenen Kerne  $f_{\text{b}}^i$  ergeben sich analytisch unter der für die Reaktorbestrahlung realistischen Annahme eines zeitlich konstanten Neutronenflusses zu  $f_{\text{b}}^i = (1 - e^{-\lambda_i t_{\text{irr}}}) / \lambda_i t_{\text{irr}}$ .

Die Zahl der Targetkerne  $N_{\text{Target}}$  der metallischen Monitorfolien wird durch Wiegen bestimmt. Für  $^{179}\text{Ta}$  ergibt sie sich aus der Eigenaktivität (vgl. Tab. 2.4) gemäß

<sup>8</sup> Folgt aus Gleichung (2.7) für die Monitore.

<sup>9</sup> Was sich selbstkonsistent durch Vergleich der gemessenen Wirkungsquerschnitte ( $I_{\text{res}} > \sigma_{\text{th}}$ ) ergibt.

<sup>10</sup> Folgt aus der 0.5 mm Bestrahlung.

$$N^{179} = \frac{c_{K\alpha, K\beta} / LT}{\lambda^{179} \cdot I_{K\alpha, K\beta} \cdot \epsilon_{K\alpha, K\beta}}, \quad (2.11)$$

die vor und nach der Bestrahlung bestimmt wurde und innerhalb des statistischen Fehlers übereinstimmte.

Die Zahl der aktivierten Kerne  $N_{\text{akt}}^i$  erhält man durch Auszählen prominenter  $\gamma$ -Linien aus dem Zerfall der gebildeten instabilen Nuklide ( $^{180}\text{Ta}$ ,  $^{198}\text{Au}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ):

$$N_{\text{akt}}^i = \frac{c_\gamma}{I_\gamma \cdot \epsilon_\gamma \cdot f_w \cdot f_m \cdot K_\gamma} \cdot C_P \cdot C_{\text{SUM}} \quad (2.12)$$

mit

- $c_\gamma$ : Zahl der gemessenen Ereignisse einer  $\gamma$ -Linie;
- $I_\gamma$ : absolute Linienintensität der  $\gamma$ -Linie;
- $\epsilon_\gamma$ : Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors zur  $\gamma$ -Energie;
- $f_w$ : Korrekturfaktor für die zwischen Bestrahlungsende und Messbeginn ( $t_w$ ) zerfallenen Kerne,  $f_w = e^{-\lambda t_w}$ ;  $\lambda$ : Zerfallskonstante von  $^{180}\text{Ta}$ ;
- $f_m$ : Faktor, der für die Totzeit und den Zerfall während der Messzeit korrigiert:  $f_m = \frac{LT}{RT} (1 - e^{-\lambda RT})$ ;
- $K_\gamma$ : Korrekturfaktor für die  $\gamma$ -Selbstabsorption;  $K_\gamma = (1 - e^{-\mu d}) / \mu d$   
 $\mu$ : Absorptionskoeffizient,  $d$ : Probendicke;
- $C_P$ : *Pile-up*-Korrektur für die entsprechende  $\gamma$ -Linie. Diese Korrektur berücksichtigt den gleichzeitigen Nachweis zweier unabhängiger Ereignisse im Detektor. Die Energien der beiden Photonen werden dabei aufaddiert und entsprechend fehlen diese Ereignisse in der ursprünglichen  $\gamma$ -Linie. Der *Pile-up*-Effekt ist ein reiner Zählrateneffekt.
- $C_{\text{SUM}}$ : *Summations*-Korrektur für die entsprechende  $\gamma$ -Linie. Diese Korrektur ähnelt der *Pile-up*-Korrektur. Auch hier wird für den Verlust der Ereignisse durch gleichzeitigen Nachweis zweier Ereignisse im Detektor korrigiert. Der Unterschied zur *Pile-up*-Korrektur liegt darin, dass diese Ereignisse keine zufällige, sondern echte Koinzidenzen darstellen, wie sie z.B. beim Zerfall in einer  $\gamma$ -Kaskade vorkommen.<sup>11</sup>

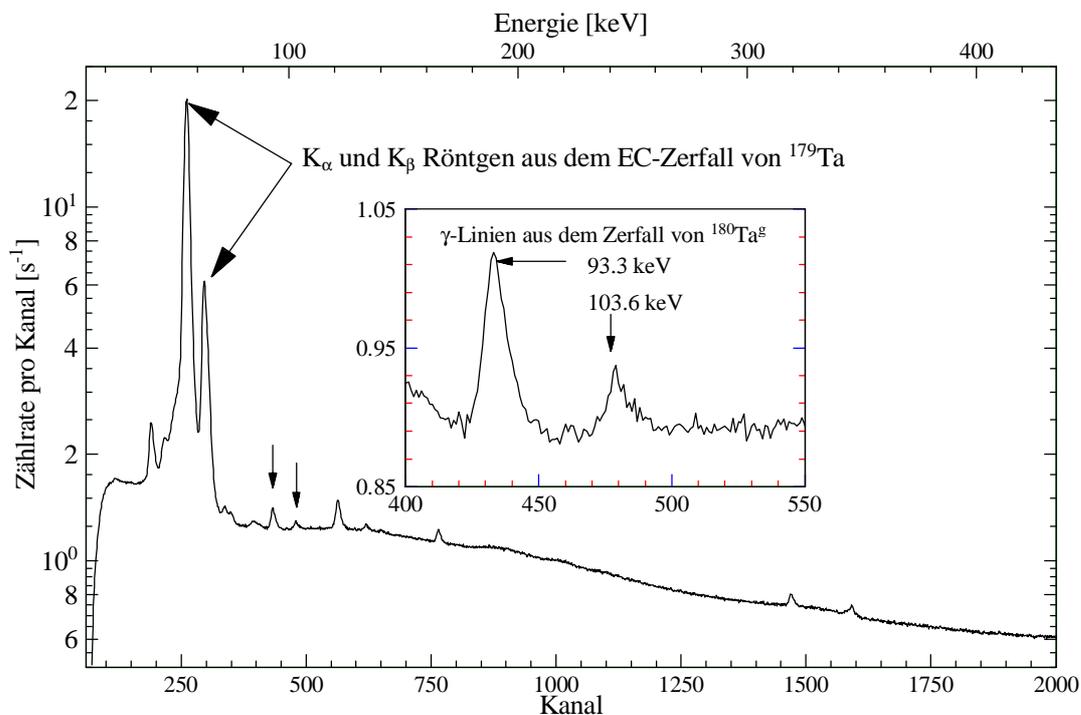
Für  $^{180}\text{Ta}$  muss zusätzlich die Absorption der  $\gamma$ -Strahlung im Al-Träger berücksichtigt werden.

<sup>11</sup> Dabei kann es bei Mehrstufenkaskaden prinzipiell sowohl zu einem Verlust, als auch zu einem Zuwachs an Ereignissen führen. Man spricht von *Summing-out* und *Summing-in* Korrekturen.

Die  $^{198}\text{Au}$ - und  $^{60}\text{Co}$ -Aktivitäten wurden anhand der 412 keV und 1171 keV Linien in ca. 1 m Abstand von einem  $40\text{ cm}^3$  HPGe-Detektor mit guter Statistik ermittelt. Die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors bei diesem Abstand (XXL-Aufsatz) wurde zuvor mit Hilfe von monoenergetischen Eichquellen im Energiebereich 20-1200 keV bestimmt. Aufgrund der geringen Effizienz ( $\varepsilon_\gamma \approx 10^{-5}$ ) und der damit verbundenen kleinen Zählraten wurden die Korrekturen  $C_P = C_{\text{SUM}} = 1$ .

Die  $^{180}\text{Ta}$ -Aktivität ergab sich aus der 93.3 keV  $\gamma$ -Linie, deren 8.15 h Halbwertszeit gut reproduziert werden konnte (vgl. Tab. 2.5). Aufgrund der geringeren Zählrate im Vergleich zu den Monitorfolien wurde die Probe näher (13.5 cm Abstand) zum Detektor platziert. Die Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors in dieser Geometrie wurde mit Hilfe der Eichquellen  $^{241}\text{Am}$  ( $E_\gamma = 59.5\text{ keV}$ ) und  $^{109}\text{Cd}$  ( $E_\gamma = 88.0\text{ keV}$ ) sowie anschließender Extrapolation auf 93.3 keV bestimmt. Die 103.6 keV  $\gamma$ -Linie aus dem  $\beta^-$ -Zerfall von  $^{180}\text{Ta}^g$  wurde nicht zur Ermittlung der  $^{180}\text{Ta}$ -Aktivität herangezogen, da die Halbwertszeit der Linie Beiträge eines langlebigeren Zerfalls zeigt. Eine eingehendere Diskussion findet sich in Kap. 2.2.4.2.

Abb. 2.6 zeigt das  $\gamma$ -Spektrum der Probe TA1 nach der Bestrahlung im Reaktor im Energiebereich 10-440 keV. Mit Pfeilen gekennzeichnet sind die  $K_\alpha$ - und  $K_\beta$ -Röntgenlinien der  $^{179}\text{Ta}$ -Eigenaktivität, sowie die 93.3 und 103.6 keV  $\gamma$ -Linien aus dem Zerfall von  $^{180}\text{Ta}$ , welche beide deutlich vom Untergrund getrennt sind. Der hohe Comptonuntergrund im gezeigten Energiefenster ist fast ausschließlich auf die durch  $^{27}\text{Al}(n,\alpha)$  entstandene  $^{24}\text{Na}$ -Aktivität der Trägerfolie zurückzuführen.



**Abb. 2.6:**  $\gamma$ -Spektrum nach der Bestrahlung der Probe im Reaktor ohne Absorber. Die  $\gamma$ -Linien aus dem Zerfall von  $^{180}\text{Ta}^g$  sind mit Pfeilen gekennzeichnet.

**Tab. 2.4:** Zerfallseigenschaften von  $^{179}\text{Ta}$ . Beim Zerfall werden keine  $\gamma$ 's emittiert [NNDC]<sup>a</sup>, [TRI86]<sup>b</sup>

<b><math>^{179}\text{Ta}</math> (<math>1.82 \pm 0.03</math> y)<sup>a</sup>; EC</b>				
	Photonen <sup>b</sup>		Auger Elektronen <sup>b</sup>	
$\gamma$ -Mode	$E_\gamma$ (keV)	$I_\gamma$ (%)	$e_{\text{bin}}$ (keV)	$I_e$ (%)
Hf L	7-10.7	$18.8 \pm 1.0$	10-11	43.5
Hf $K_{\alpha 2}$	54.611	$13.5 \pm 0.4$	43-46	1.4
Hf $K_{\alpha 1}$	55.790	$23.6 \pm 0.7$	51-56	0.73
Hf $K_{\beta 1}$	63.166	$7.70 \pm 0.22$	60-63	0.075
Hf $K_{\beta 2}$	65.211	$2.00 \pm 0.06$		

**Tab. 2.5** Zerfallseigenschaften von  $^{180}\text{Ta}$ . Die Angaben stammen aus [NNDC]<sup>a</sup>, [TRI86]<sup>b</sup>.

<b><math>^{180}\text{Ta}</math> (<math>8.152 \pm 0.006</math> h)<sup>a</sup>; EC, <math>\beta^-</math></b>				
	<sup>a+b</sup> Photonen		<sup>a</sup> Auger- und ce Elektronen	
$\gamma$ -Mode	$E_\gamma$ (keV)	$I_\gamma$ (%)	$e_{\text{bin}}$ (keV)	$I_e$ (%)
<sup>a</sup> Hf L	7.0-10.7	$23.0 \pm 3.0$	6.18	$63 \pm 4$
<sup>a</sup> W L	7.4-11.4	$0.65 \pm 0.17$	6.53	$1.5 \pm 0.4$
<sup>a</sup> Hf $K_{\alpha 2}$	54.611	$20.4 \pm 0.8$	28.05	$5.0 \pm 0.3$
<sup>a</sup> Hf $K_{\alpha 1}$	55.790	$35.7 \pm 1.3$	34.07	$0.68 \pm 0.2$
<sup>b</sup> W $K_{\alpha 2}$	57.981	$0.17 \pm 0.03$	44.8	$3.42 \pm 0.14$
<sup>b</sup> W $K_{\alpha 1}$	59.318	$0.29 \pm 0.05$	45.7	$0.029 \pm 0.009$
<sup>a</sup> Hf $K_\beta$	63.2	$15.0 \pm 0.6$	82.13	$12.3 \pm 0.6$
<sup>b</sup> W $K_{\beta 1}$	67.155	$0.097 \pm 0.016$	90.8	$3.05 \pm 0.15$
<sup>b</sup> W $K_{\beta 2}$	69.342	$0.025 \pm 0.004$	91.5	$1.6 \pm 0.5$
<sup>a</sup> $\gamma$ EC	93.331	$0.0451 \pm 0.0016$	92.86	$0.87 \pm 0.05$
<sup>a</sup> $\gamma$ $\beta^-$	103.6	$0.0081 \pm 0.0024$	100.8	$0.40 \pm 0.12$
			103.0	$0.12 \pm 0.04$

### 2.2.3 Fehlerbetrachtung

Die Unsicherheiten der experimentell bestimmten Werte  $\sigma_{\text{th}}^{\text{Ta}}$ ,  $I_{\text{res}}^{\text{Ta}}$  und  $I_{\text{res}}^{\text{Ta}}/\sigma_{\text{th}}^{\text{Ta}}$  ergeben sich durch die quadratische Summation der prozentualen Fehler der einzelnen unabhängigen Komponenten in den Gleichungen (2.10), (2.9) und (2.8). Streng genommen sind  $R_{\text{Cd}}$  und  $C_{\text{Cd}}$  keine unabhängigen Größen; die Korrelation ist jedoch schwach, so dass sie in guter Näherung als unabhängig betrachtet werden können.

In Tab. 2.6 sind alle auftretenden Fehlerquellen aufgelistet. Der Fehler von  $N_{\text{akt}}^i$  ergibt sich durch quadratische Summation der Unsicherheiten in Gleichung (2.12) (Zeile 1-9). Entsprechend erhält man die Unsicherheit der Aktivierung  $C$  durch Summation von Zeile 1-11. Es zeigt sich, dass  $\Delta C^{\text{Au,Co}}$  relativ klein ist und von der Unsicherheit der Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors dominiert wird. Dagegen liefert der Fehler für die absolute Intensität der 93.3 keV  $\gamma$ -Linie den größten Beitrag zu  $\Delta C^{\text{Ta}}$ .

Der Fehler für die Zahl der Targetkerne  $\Delta N_{\text{Target}}^{\text{Au,Co}}$  entspricht dem Wiegefehler.  $N_{\text{Target}}^{\text{Ta}}$  ergibt sich aus der Eigenaktivität der Probe und kann mit sehr guter Statistik ( $\Delta C_{K\alpha, K\beta} < 0.1\%$ ) bestimmt werden. Dominierende Fehlerquellen sind hier die Unsicherheiten in der Halbwertszeit und in der Linienintensität (vgl. Tab. 2.4). Letztere wird reduziert, indem man den Mittelwert von  $N^{179}$  aus der  $K_{\alpha}$ - und  $K_{\beta}$ -Bestimmung heranzieht.

In die Korrektur der während der Bestrahlung zerfallenen Kerne  $f_b^i$  geht die Halbwertszeit und die zeitliche Variation des Flusses ein. Durch die Regelung im Reaktor ist der Fehler durch die zeitliche Variation zu vernachlässigen,  $\Delta f_b^i$  wird dann alleinig durch den Fehler in der Halbwertszeit bestimmt und ist deshalb auch größer für  $f_b^{\text{Ta}}$ .

Das Kadmiumverhältnis  $R_{\text{Cd}}$  kann mit höherer Präzision bestimmt werden, da in die Bildung des Aktivierungsverhältnisses nur messtechnische Größen mit kleineren Unsicherheiten (Zeile 1-5, Tab. 2.6) eingehen.

Die Fehler der Korrekturen für die thermische und epithermische Selbstabschirmung ergeben sich für  $^{179}\text{Ta}$  aus der konservativen Annahme für die Berechnung von  $G_{\text{th,epi}}$ , dass alle Target-Atome punktförmig ( $\varnothing < 0.1$  mm) konzentriert sind.  $\Delta G_{\text{th,epi}}(\text{Au})$  und  $\Delta G_{\text{th}}(\text{Co})$  sind aus der Literatur [Alb62], [Bro63], [Ben68] entnommen. Für  $\Delta G_{\text{epi}}(\text{Co})$  wird die Abweichung des experimentellen zum theoretischen Wert angenommen (3.5%).

Die Fehler für die thermischen und epithermischen Einfangquerschnitte der Monitore sind, analog zu den Querschnitten, ebenfalls aus der Literatur entnommen.

$\Delta F_{\text{Cd}}(\text{Au})$  erhält man durch den Ablesefehler in [Bek64] und  $\Delta F_{\text{Cd}}(\text{Co})$  durch Abschätzung des systematischen Fehlers bei der Extrapolation des Literaturwertes für unendlich dünne Folien auf die verwendete Dicke [Sim84]. Der systematische Fehler von  $F_{\text{Cd}}(\text{Ta})$  lässt sich hingegen schwer abschätzen, da der Verlauf des Wirkungsquerschnitts unbekannt ist. Die mit  $F_{\text{Cd}}(\text{Ta}) = 1$  errechneten Werte für  $I_{\text{res}}(^{179}\text{Ta})$  und  $\sigma_{\text{th}}(^{179}\text{Ta})$  liefern  $I_{\text{res}}(^{179}\text{Ta}) > \sigma_{\text{th}}(^{179}\text{Ta})$ , was ein Hinweis auf eine nicht unerwartete Resonanzabsorption ist. Der  $1/v$ -Beitrag zum Resonanzintegral ist deswegen gering einzuschätzen und entsprechend sollte auch der Fehler für diese Korrektur klein sein. Ein Vergleich mit Literaturwerten ergibt als Abschätzung  $\Delta F_{\text{Cd}}(\text{Ta}) \approx 10\%$ , was sich aber aufgrund des großen Kadmiumverhältnisses vernachlässigbar in  $\Delta \sigma_{\text{th}}(^{179}\text{Ta})$  niederschlägt. Größere Fehler, die durch Resonanzen im Abschneidfenster 0.1 - 0.7 eV verursacht werden können, wurden durch die erneute Bestrahlung mit dem dünneren Cd-Absorber ( $d = 0.5$  mm) ausgeschlossen.

**Tab. 2.6:** Zusammenfassung aller Fehler, die bei der Ermittlung des thermischen Einfangquerschnitts und des Resonanzintegrals von  $^{179}\text{Ta}$  auftraten. Die einzelnen Spalten beziehen sich sowohl auf die induzierte Aktivität, als auch auf die Ausgangssubstanz des jeweiligen Elements. Alle Fehler sind in Prozent angeben. Für die Diskussion der einzelnen Beiträge siehe Text.

		<b>Größe</b>	<b>Ta</b>	<b>Au</b>	<b>Co</b>
statistisch		$c_\gamma$	1.0 - 1.9	0.2	0.2-0.5
systematisch	Messung	$f_w$	0.1	< 0.1	< 0.1
		$f_m$	< 0.1	< 0.1	< 0.1
		$C_P$	0.7 - 1.0	0.2 - 0.3	0.1 - 0.2
		$C_{SUM}$	< 0.1	< 0.1	< 0.1
		$K_\gamma$	< 0.1	< 0.1	< 0.1
		$a_\gamma$	< 0.1		
		$I_\gamma$	3.5	0.1	< 0.1
		$\epsilon_\gamma$	2.0	1.0	1.0
	Bestrahlung	$N_{Target}$	2.6	0.7	0.3
		$f_b$	< 0.5	< 0.1	< 0.1
Evaluierung	$G_{epi}$	< 0.5	2.0	3.5	
	$G_{th}$	< 0.1	0.5	< 0.5	
	$F_{Cd}$	< 10	< 1.5	< 3.0	
	$I_{res}$		1.8	2.0	
	$\sigma_{th}$		0.1	0.16	
Gesamt	Ergebnisse	$C$	5.0 - 5.2	1.3	1.2
		$R_{Cd}$	3.2 - 3.6	1.0	0.6
		$I_{res}$	5.8		
		$\sigma_{th}$	6.7		

## 2.2.4 Ergebnisse

### 2.2.4.1 Querschnitte

Insgesamt wurden drei Bestrahlungen durchgeführt, einmal ohne und zweimal mit Cd-Absorbern unterschiedlicher Dicke ( $d = 0.5$  mm,  $d = 1.0$  mm). Dabei diente die dünnere Cd-Bestrahlung in erster Linie dazu, den Wirkungsquerschnittverlauf von  $^{179}\text{Ta}$  im Energiefenster der Cd-Abschneideenergie zu untersuchen, um daraus den Fehler für  $F_{\text{Cd}}(\text{Ta})$  abschätzen zu können.

Mit den experimentell bestimmten Größen  $R_{\text{Cd}}$  und  $C_{\text{Cd}}$  und den Gleichungen (2.8), (2.9) und (2.10) ergeben sich die in Tab. 2.7 aufgelisteten Resultate. In den ersten zwei Zeilen sind die Ergebnisse der Messungen ohne und mit dem 1.0 mm dicken Cd-Absorber dargestellt. Die gute Übereinstimmung der Zahlenwerte beider Monitore bestätigt, dass keine thermischen Anteile im Spektrum vorlagen. Im Gegensatz dazu weicht das aus der 0.5 mm Bestrahlung berechnete Resonanzintegral für Kobalt erheblich von dem mit dem 1.0 mm dicken Absorber erzielten Wert ab. Diese Diskrepanz lässt sich durch einen signifikanten thermischen Anteil im Neutronenspektrum erklären, was aus der Inkonsistenz der Monitorflüsse ( $\Phi^{\text{Au}} \neq \Phi^{\text{Co}}$ ) auch abgeleitet werden konnte, und wahrscheinlich auf die große Dickenvariationen (0.15 mm) des Cd-Absorbers zurückgeführt werden kann. Entsprechend ließen sich  $I_{\text{res}}$  und  $\sigma_{\text{th}}$  aus dieser Bestrahlung nicht ermitteln.

Dennoch lieferte die Bestrahlung mit dem dünneren Absorber ein wichtiges Ergebnis. Die erheblichen thermischen Anteile im Neutronenspektrum bedeuten eine Verschiebung der Cd-Abschneideenergie über die Grenze des epithermischen Spektrums hinaus. Die aus dem Kobaltmonitor berechneten Resonanzintegrale zeigen zwar eine Diskrepanz, jedoch fällt dieser Unterschied relativ klein aus ( $I_{\text{res}}(0.5 \text{ mm}) / I_{\text{res}}(1.0 \text{ mm}) = 1.48$ ) und entspricht im Rahmen der Fehler dem Verhältnis  $(\sigma_{\text{th}}/I_{\text{res}})^{\text{Ta}} / (\sigma_{\text{th}}/I_{\text{res}})^{\text{Co}}$ . Damit können Resonanzen im Wirkungsquerschnittverlauf von  $^{179}\text{Ta}$  im Energiefenster um die Cd-Abschneideenergie ausgeschlossen werden, und man erhält ferner eine Bestätigung des berechneten  $(\sigma_{\text{th}}/I_{\text{res}})^{\text{Ta}}$  Verhältnisses.

Der thermische Wirkungsquerschnitt ist gemäß dem Standardverfahren zur wahrscheinlichsten Energie im Neutronenspektrum  $E_0 = 0.0253$  eV angegeben. Der über das Maxwell-Boltzmann Spektrum gemittelte Einfangquerschnitt folgt aus der Beziehung

**Tab. 2.7:** Messergebnisse für die Einfänge zum Grundzustand im  $^{180}\text{Ta}$ .

Messergebnis relativ zu		$I_{\text{res}}^{179\text{Ta}}(E_{\text{Cd}})$	$\sigma_{\text{th}}^{179\text{Ta}}(E_0)$	$I_{\text{res}}^{\text{Ta}} / \sigma_{\text{th}}^{\text{Ta}}$
aus 1.0 mm Cd	Gold:	$1205 \pm 72$ b	$979 \pm 68$ b	$1.19 \pm 0.06$
	Kobalt:	$1170 \pm 70$ b	$916 \pm 62$ b	$1.28 \pm 0.07$
aus 0.5 mm Cd	Kobalt:	$1737 \pm 103$ b		

$$\overline{\sigma}_{\text{th}} = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \sigma_{\text{th}}(E_0).$$

Das Resonanzintegral in Tab. 2.7 ist eine experimentelle Größe und daher abhängig von der Cd-Abschneideenergie  $E_{\text{Cd}}$  gemäß

$$I_{\text{res}}^{\text{exp}} = \int_{E_{\text{Cd}}}^{\infty} \frac{\sigma(E)}{E} dE.$$

Die in der Literatur tabellierten Resonanzintegrale sind zu den Integrationsgrenzen 0.55 eV und 2 MeV angegeben. Die Transformation der experimentellen Resonanzintegrale auf diese Grenzen ist für einen 1/v-Absorber gegeben durch [Ben68]:

$$I_{\text{res}} \Big|_{0.55 \text{ eV}}^{2 \text{ MeV}} = k \cdot I_{\text{res}}^{\text{exp}}$$

$$I_{\text{res}} \Big|_{0.55 \text{ eV}}^{2 \text{ MeV}} = \left[ 1 + 0.318 \left( \frac{1}{\sqrt{E_{\text{Cd}}}} - 1.348 \right) \cdot \left( \frac{\sigma_0}{I_{\text{res}}} \right) \right] \cdot I_{\text{res}}^{\text{exp}}.$$

Die Extrapolation der gemessenen Resonanzintegrale liefert daher<sup>12</sup>:

$$I_{\text{res}} \Big|_{0.55 \text{ eV}}^{2 \text{ MeV}} = \frac{k^{\text{Ta}}}{k^{\text{Mon}}} \cdot I_{\text{res}}^{\text{exp}}$$

Für einen 1 mm Cd-Absorber im isotropen Neutronenfeld gilt  $E_{\text{Cd}} = 0.68$  eV [Ben68], was nur zu geringen Korrekturen führt ( $k^{\text{Ta}} / k^{\text{Au}} = 1.035$ ,  $k^{\text{Ta}} / k^{\text{Co}} = 1.013$ ). Der Fehler der Korrektur wurde zu 0.5-2.0% abgeschätzt, was auf die Unsicherheiten in der Ermittlung von  $E_{\text{Cd}}$  zurückzuführen ist. Das Endergebnis erhält man aus dem gewichteten Mittel der beiden Monitore, wobei in die Gewichtung nur die unabhängigen Größen eingehen.

**Tab. 2.8:** Endergebnis für die Einfänge zum Grundzustand von  $^{180}\text{Ta}$ .

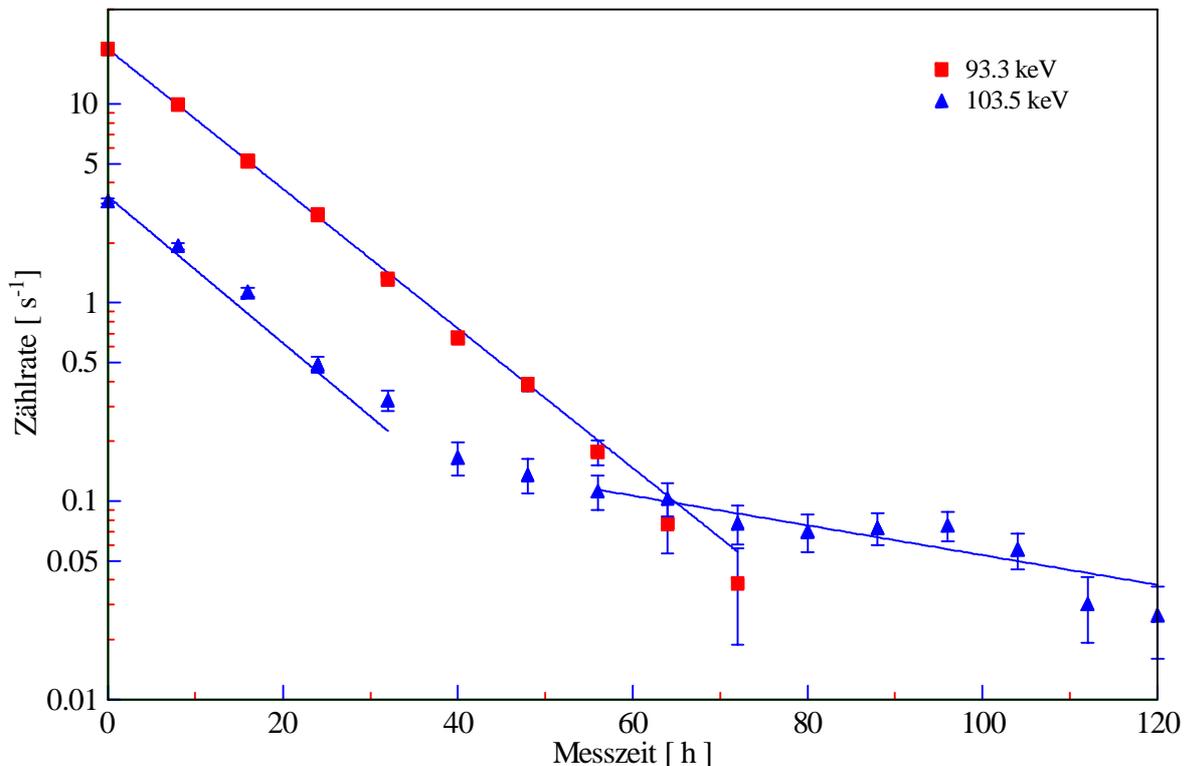
$I_{\text{res}}^{179\text{Ta}} \Big _{0.55 \text{ eV}}^{2 \text{ MeV}}$	$\sigma_{\text{th}}^{179\text{Ta}}(E_0)$	$I_{\text{res}}^{\text{Ta}} / \sigma_{\text{th}}^{\text{Ta}}$
$1216 \pm 69$ b	$932 \pm 62$ b	$1.23 \pm 0.06$

<sup>12</sup> In der Evaluierung des experimentellen Resonanzintegrals von  $^{179}\text{Ta}$  wurden die tabellierten Resonanzintegrale der Monitore verwendet. Daher müssen die Resonanzintegrale der Monitore ebenfalls korrigiert werden.

### 2.2.4.2 Zerfallseigenschaften

Die Halbwertszeit von  $^{180}\text{Ta}^g$  ließ sich anhand der 93.3 keV Linie gut reproduzieren. Im Gegensatz dazu zeigte die 103.6 keV  $\gamma$ -Linie Anteile einer langlebigeren Zerfallskomponenten mit  $t_{1/2} = 44$  (15) h (vgl. Abb. 2.7). Dieser Halbwertszeit konnte im Rahmen der Fehler noch eine weitere Linie im Spektrum bei  $E_\gamma = 140.5$  keV zugeordnet werden (vgl. Abb. 2.8). Die Frage inwieweit die Linien aus dem gleichen Zerfall stammen, muss angesichts der unzureichenden Datenbasis unbeantwortet bleiben, allerdings würde sich die 103.6 keV-Linie kompatibel zum Zerfall von  $^{153}\text{Sm}$  ( $t_{1/2} = 46.27$  h,  $E_\gamma = 103.2$  keV) zeigen. Weitere  $\gamma$ -Linien aus  $^{153}\text{Sm}$  und aus anderen Sm-Isotopen können aufgrund der geringen Intensität nicht nachgewiesen werden. Ein weiterer Hinweis für einen  $^{153}\text{Sm}$ -Zerfall könnten die im Spektrum nachgewiesenen  $\gamma$ -Linien aus dem  $^{152}\text{Eu}$ -Zerfall darstellen. Eine Abschätzung zeigt, dass, um ein Signal obiger Größe zu erzeugen, ca. 4 ng Sm als Verunreinigung in der Probe ausreichen. In der Analyse der Trägerfolie (99.999%) ist Sm nicht aufgelistet, jedoch sind typische Angaben anderer Verunreinigungen in der Größenordnung  $< 0.1$  ppm, was gerade 3 ng entspräche.

Für die 140.5 (1) keV  $\gamma$ -Linie ist durch den Zerfall von  $^{99}\text{Mo}$  ( $t_{1/2} = 66.0$  h) ebenfalls eine Alternative gegeben. Analog zum  $^{153}\text{Sm}$  sind weitere  $\gamma$ -Linien aus  $^{99}\text{Mo}$  oder anderen Mo-Isotopen zu schwach um nachgewiesen zu werden. Aufgrund der guten Übereinstimmung der Halbwertszeiten scheint ein  $^{99}\text{Mo}$ -Zerfall allerdings wahrscheinlicher als die Hypothese eines neuen Zerfalls.

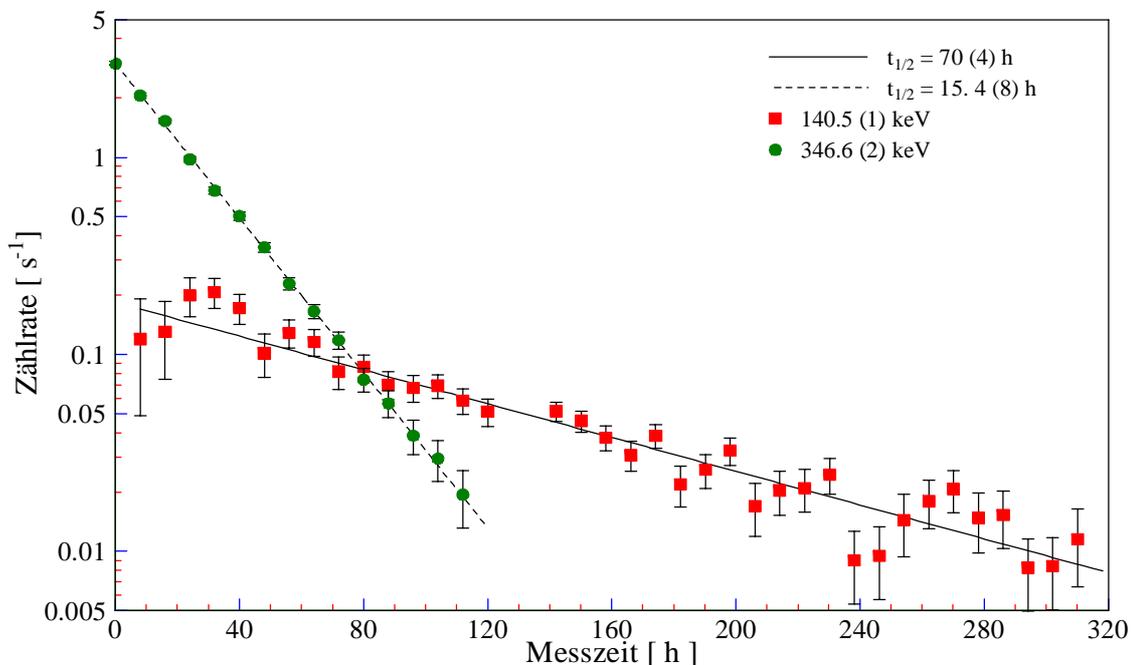


**Abb. 2.7:** Zählraten der 93.3 und 103.6 keV  $\gamma$ -Linien aus dem Zerfall von  $^{180}\text{Ta}^g$  in Abhängigkeit von der Messzeit.

In Abb. 2.8 erkennt man den Zählratenverlauf einer weiteren  $\gamma$ -Linie bei  $E_\gamma = 346.6$  (2) keV, die eine Signifikanz  $> 70 \sigma$  zeigte und deren Halbwertszeit zu  $t_{1/2} = 15.4$  (8) h bestimmt wurde. In der Literatur findet man keine bekannte Zerfälle, die eine solche Signatur aufweisen [NNDC]. Ein Artefakt das zu dieser Linie geführt haben könnte (Pile-up-, oder koinzidentes Aufsummieren) kann ausgeschlossen werden. Sie muss einem neuen Zerfall zugeordnet werden. Ob es sich hierbei um einen Zerfall von  $^{180}\text{Ta}$ , oder um den Zerfall eines anderen unbekanntes Isotops im Probenträger handelt, kann nicht bestimmt werden. Für Nuklide, die über thermischen Neutroneneinfang gebildet werden, ist die Datenbasis allerdings recht umfangreich, und angesichts der Größe des Signals erscheint es sehr unwahrscheinlich, dass ein solcher Zerfall bei anderen Experimenten unentdeckt geblieben sein soll. Die Schlussfolgerung ist daher, dass es sich mit größter Wahrscheinlichkeit um einen Zerfall von  $^{180}\text{Ta}$  handelt.

Die Niveauschemata von  $^{180}\text{W}$  und  $^{180}\text{Hf}$  zeigen keine bekannten Übergänge mit dieser Energie, so dass auf einen internen Übergang im  $^{180}\text{Ta}$  geschlossen werden müsste. Schwächere Übergänge zu  $^{180}\text{W}$  und  $^{180}\text{Hf}$  sind aufgrund des hohen Untergrundes, insbesondere bei den W- und Hf-Röntgenlinien aber nicht auszuschließen.

Um eine eindeutige Zuordnung der  $\gamma$ -Linie zu erhalten, sind weitere Bestrahlungen mit unterschiedlichen  $^{179}\text{Ta}$ -Probenmassen erforderlich, die allerdings im Zeitrahmen dieser Doktorarbeit nicht mehr möglich waren. Die Stärke der 345.6 keV-Linien deutet aber stark daraufhin, dass es sich um einen Übergang im  $^{180}\text{Ta}$  handelt.



**Abb. 2.8:** Zählraten nicht identifizierter Linien in Abhängigkeit von der Messzeit.

## 2.3 Stellarer Neutroneneinfangquerschnitt

Prinzipiell kann eine Messung des stellaren Maxwell-gemittelten Querschnitts auf zwei Arten durchgeführt werden. Zum einen kann der differentielle  $(n,\gamma)$ -Querschnitt durch Detektion der prompt emittierten  $\gamma$ -Strahlung in einem „In-Beam“- Experiment ermittelt und anschließend die Anregungsfunktion mit einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung gefaltet werden. Zum anderen kann aber auch ein stellares Neutronenfeld im Labor erzeugt und die bei der Bestrahlung entstehenden Reaktionsprodukte nachgewiesen werden.

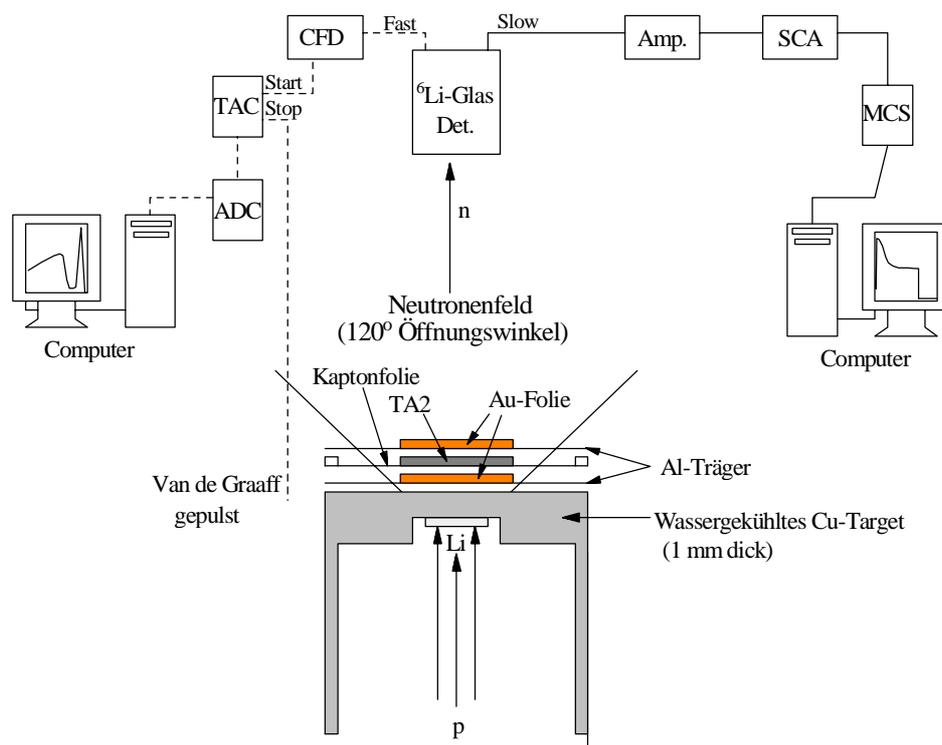
Aufgrund der geringen  $^{179}\text{Ta}$ -Probenmenge und der nach Neutronenenergien differenzierten geringeren Neutronenflüsse muss eine differentielle Messung ausgeschlossen werden. Eine sehr sensitive Möglichkeit um kleine Proben zu untersuchen ist dagegen durch die Aktivierungsmethode gegeben. Dabei wird die Aktivität des radioaktiven Produktkerns  $^{180}\text{Ta}^g$  bestimmt und daraus die Zahl der produzierten Kerne ermittelt. Durch die Beschränkung auf den kurzlebigen Grundzustand  $^{180}\text{Ta}^g$  lässt sich zwar nur der Partialquerschnitt  $\sigma_g = \sigma(^{179}\text{Ta} \rightarrow ^{180}\text{Ta}^g)$  messen, jedoch ergibt sich der gesuchte Querschnitt aus dem bekannten Verzweigungsverhältnis  $B = \sigma_m / (\sigma_m + \sigma_g) = 0.043 \pm 0.008$  für  $kT = 30$  keV [Nem92].

Die Bestimmung des Neutronenflusses erfolgt bei dieser Methode aus der Aktivität mitbestrahlter Goldfolien, so dass sich der gesuchte Einfangquerschnitt relativ zum Einfangquerschnitt von Gold ergibt.

### 2.3.1 Aktivierung im quasistellaren Spektrum

Am Karlsruher 3.75 MV Van de Graaff Beschleuniger wird ein quasistellares Neutronenspektrum für astrophysikalische Untersuchungen standardmäßig durch die  $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$  Reaktion erzeugt. Dazu wird Einschussenergie der Protonen auf 31 keV oberhalb der Schwellenenergie (1881 keV) der  $(p,n)$ -Reaktion gewählt, wodurch das winkelintegrierte Neutronenspektrum annähernd einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung mit  $kT = 25$  keV entspricht [Rat88] und alle Neutronen aufgrund der Reaktionskinematik in Vorwärtsrichtung in einen Kegel mit  $120^\circ$  Öffnungswinkel emittiert werden. Mit Protonenströmen von ca. 100  $\mu\text{A}$  sind dabei integrale Neutronenflüsse bis zu  $3 \cdot 10^9$  n/s möglich.

Abb. 2.9 zeigt die experimentelle Anordnung der Bestrahlungen. Die Protonen treffen auf eine 30  $\mu\text{m}$  dicke, auf Kupfer aufgedampfte Li-Schicht von 6 mm Durchmesser, die durch Wobblung und Blenden gleichmäßig ausgeleuchtet wird. Das 1 mm dicke Cu-Backing wird durch eine außerhalb des Neutronenfeldes verlaufende Ringkühlung gekühlt. Direkt auf dem Backing befindet sich die  $^{179}\text{Ta}$ -Probe (TA2), die zwischen zwei 0.05 mm dicken Goldfolien angebracht ist. Die Probe und die Goldfolien haben einen Durchmesser von 10 mm, sind auf Trägerfolien aus Aluminium und Kapton aufgebracht und liegen noch vollständig im Neutronenkegel. Mit dieser Anordnung wird der maximale Neutronenfluss erfasst.



**Abb. 2.9:** Experimentelle Anordnung bei den Neutronenbestrahlungen. Zur Erklärung der Komponenten: Amp: Verstärker, SCA: Einkanaldiskriminator, MCS: Vielkanalzähler, ADC: Analog-zu-Digitalkonverter, TAC: Zeit-zu-Pulshöhenkonverter, CFD: Constant Fraction Discriminator.

Um für den Zerfall der während der Bestrahlung erzeugten Kerne korrigieren zu können, wurde der zeitliche Verlauf des Neutronenflusses durch einen in 1 m Abstand vom Neutronentarget montierten  ${}^6\text{Li}$ -Glas-Detektor aufgezeichnet. Die Eichung der Protonenenergie ( $E_p = 1912$  keV) erfolgte über die kinematisch festgelegte Maximalenergie der Neutronen ( $E_n = 106$  keV), welche über die Flugzeit der Neutronen vom Target zum  ${}^6\text{Li}$ -Glas-Detektor bestimmt wurde.

Insgesamt wurden drei Bestrahlungen mit Bestrahlungsdauern von ca. 16 h durchgeführt und anschließend die induzierten Aktivitäten der Goldfolien und der  ${}^{179}\text{Ta}$ -Probe bestimmt.

## 2.3.2 Bestimmung der induzierten Aktivität

### 2.3.2.1 Nachweis der ${}^{198}\text{Au}$ -Aktivität

Der über das experimentelle quasistellare Spektrum gemittelte Einfangquerschnitt der Probe ergibt sich relativ zum Einfangquerschnitt von Gold zu

$$\langle \sigma \rangle_{25 \text{ keV}}^{\text{Ta}} = \frac{N_{\text{akt}}^{\text{Ta}}}{N_{\text{akt}}^{\text{Au}}} \cdot \frac{N_{\text{Target}}^{\text{Au}}}{N_{\text{Target}}^{\text{Ta}}} \cdot \frac{f_b^{\text{Au}}}{f_b^{\text{Ta}}} \cdot \langle \sigma \rangle_{25 \text{ keV}}^{\text{Au}}, \quad (2.13)$$

wobei analog zum vorigen Unterkapitel  $N_{\text{akt}}$  die Zahl der aktivierten Kerne,  $N_{\text{Target}}$  die Zahl der Targetkerne und  $f_b$  der Korrekturfaktor für die während der Bestrahlung zerfallenen Kerne bezeichnen. Unter Berücksichtigung eines zeitlich variierenden Neutronenflusses ist er gegeben durch

$$f_b = \frac{\sum_i \Phi(t_i) \cdot e^{-\lambda(t_{\text{irr}} - t_i)}}{\sum_i \Phi(t_i)}, \quad (2.14)$$

mit der Bestrahlungsdauer  $t_{\text{irr}}$ , der Zerfallskonstanten  $\lambda$  und dem Neutronenfluss  $\Phi(t_i)$  zum Zeitpunkt  $t_i$ .

Wie in Abb. 2.9 gezeigt, wurden zwei Goldfolien mitbestrahlt, um für den mit zunehmendem Abstand vom Neutronentarget bedingten Abfall des Neutronenflusses zu korrigieren. Die Flussdifferenz in dieser Geometrie betrug typischerweise 15-20%. Der Einfangquerschnitt der Probe ergibt sich aus dem Mittelwert dieser Flüsse.

Um den über das ideale Maxwell-Boltzmann Spektrum gemittelten Querschnitt für  $kT = 30 \text{ keV}$  zu erhalten, muss der in (2.13) errechnete Querschnitt für die Abweichung des experimentellen Spektrums vom idealen Maxwell-Boltzmann Spektrum korrigiert und auf die Temperatur  $kT = 30 \text{ keV}$  extrapoliert werden. Dies erfolgt unter der Berücksichtigung der Energieabhängigkeit des Querschnittverlaufs von  $^{179}\text{Ta}$  und  $^{197}\text{Au}$ . Der systematische Fehler für diese Prozedur liegt bei 2%.

Die Zahl der aktivierten  $^{198}\text{Au}$ -Kerne wurde anhand der 411.8 keV  $\gamma$ -Linie mit Hilfe eines 40  $\text{cm}^3$  HPGe-Detektors bestimmt. Es ist analog zu Kap. 2.2.2 (S. 25):

$$N_{\text{akt}}^{\text{Au}} = \frac{c_\gamma}{I_\gamma \cdot \epsilon_\gamma \cdot f_w \cdot f_m \cdot K_\gamma} \cdot C_P \cdot C_{\text{SUM}}. \quad (2.15)$$

### 2.3.2.2 Nachweis der $^{180}\text{Ta}$ -Aktivität:

#### Problemstellung

Die für die Probe TA2 erwartete induzierte Aktivität nach 16 h Bestrahlung beträgt ca. 0.1 Bq und liegt somit um 7 Größenordnungen unter der Eigenaktivität. Angesichts der geringen Probenmasse führt dies zu gravierenden Einschränkungen für den experimentellen Nachweis.

In Tab. 2.4 und Tab. 2.5 auf S. 27 sind die Zerfallseigenschaften von  $^{179}\text{Ta}$  und  $^{180}\text{Ta}$  aufgelistet. Bei beiden Zerfällen wird nur niederenergetische Strahlung ausgesandt, so dass eine Detektion der  $^{180}\text{Ta}$ -Aktivität nur durch Messung der etwas höherenergetischen  $\gamma$ 's oder Konversionselektronen erfolgen kann.

Die geringe  $^{180}\text{Ta}$ -Aktivität verlangt eine hohe Nachweiswahrscheinlichkeit für die entsprechende Strahlung, die aber durch die hohe Eigenaktivität einen inakzeptablen Untergrund durch Pile-up-Effekte verursacht. Es zeigt sich, dass ohne Unterdrückung der Eigenaktivität weder eine einfache  $\gamma$ -Messung, noch eine Konversionselektronen-Messung zum Erfolg führen.<sup>13</sup>

Aus Tab. 2.4 entnimmt man, dass ca. 50% der  $^{179}\text{Ta}$ -Aktivität durch K-Röntgenstrahlung entsteht, dass jedoch oberhalb 11 keV vergleichsweise wenige Elektronen emittiert werden. Zusätzlich stehen durch die Konversion ( $\alpha = 4.69$ ) des beim EC-Zerfall von  $^{180}\text{Ta}$  besetzten 93.3 keV Niveaus im  $^{180}\text{Hf}$  deutlich mehr Elektronen als  $\gamma$ 's zum Nachweis der induzierten Aktivität zur Verfügung. Die Detektion der  $^{180}\text{Ta}$ -Aktivität erfolgt daher über die 93.3 L - Konversionselektronenlinie bei 82 keV.

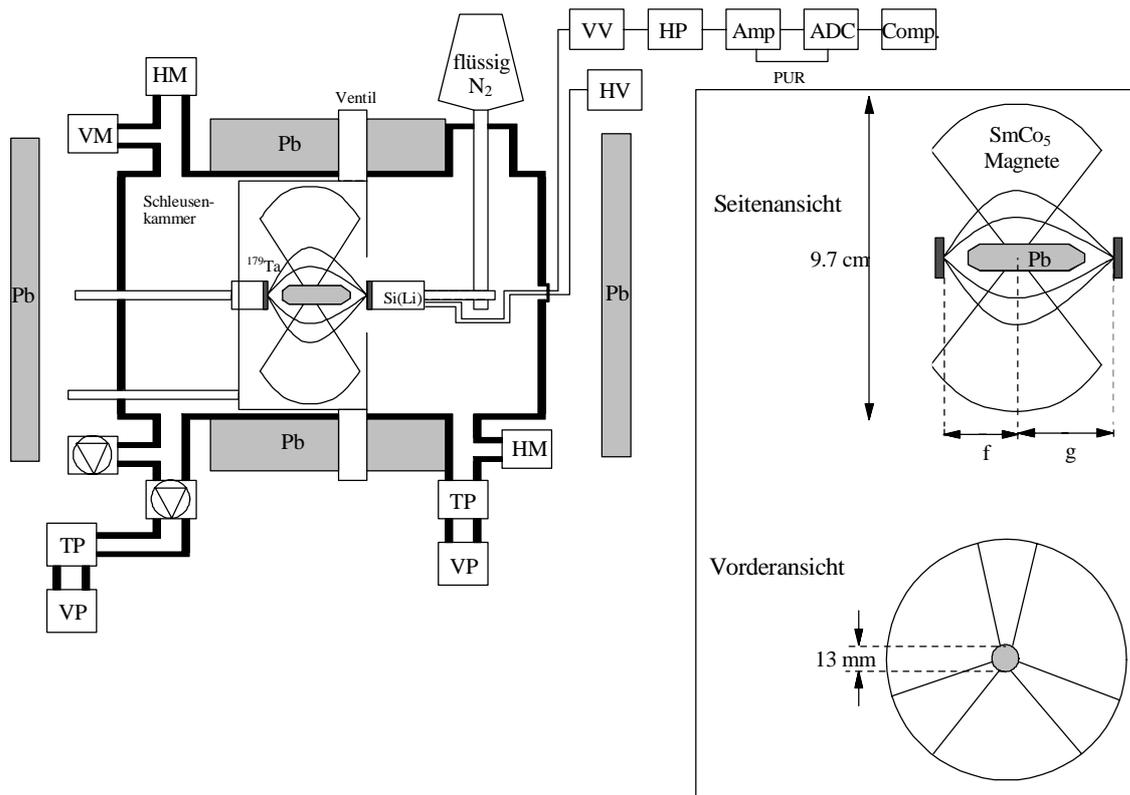
### Unterdrückung der Eigenaktivität, Aufbau des Mini-Orangen-Spektrometers

Halbleiterdetektoren zur Detektion von Konversionselektronen besitzen auch für niederenergetische Röntgenstrahlung eine hinreichend große Effizienz, so dass nicht nur die 11 keV Auger-Elektronen, sondern auch die elektromagnetische Strahlung aus der Eigenaktivität der Probe unterdrückt werden muss. Dies kann durch ein Mini-Orangen-Spektrometer mit zentralem Pb-Absorber erreicht werden.

Abb. 2.10 zeigt die Anordnung des Mini-Orangen-Spektrometers. Das Spektrometer ist aufgebaut aus einem Si(Li)-Detektor und einem Energiefilter für die Elektronen, das aus drei keilförmig zugeschnittenen  $\text{SmCo}_5$ -Permanentmagneten besteht, die orangenförmig in gleichen Abständen angeordnet sind. Die Permanentmagnete sind senkrecht zu ihrer größten Fläche magnetisiert und erzeugen somit ein toroidales Magnetfeld um die Systemachse. Entlang der Systemachse zwischen Probe und Detektor sitzt der 3.5 cm lange Zentralabsorber aus Blei ( $\varnothing = 13$  mm), der die elektromagnetische Komponente der Eigenaktivität unterdrückt. Elektronen, die aus der Probe emittiert werden, erfahren im Magnetfeld eine Ablenkung und beschreiben gemäß ihrer Energien spezifische Bahnen. So können nur diejenigen Elektronen den Detektor erreichen, die im richtigen Energiefenster emittiert werden und sich in etwa analog zu den in Abb. 2.10 gezeichneten Bahnen bewegen. Die Lage und Breite des Energiefensters hängt dabei von der Stärke und Homogenität des Magnetfeldes ab.

Die Schleusenkammer und der Magnetfilteraufbau konnten aus vorhergehenden Arbeiten übernommen werden [Wis82]. Aus einer Reihe existierender Magnetanordnungen wurde ein Filter aus 3 Magneten mit Magnetisierungsstärken von 0.15 T zusammengesetzt. Nach Optimierung der geometrischen Parameter ( $f = 12$  mm,  $g = 24$  mm) erhält man ein Maximum der Transmission bei 75 keV, eine Nachweiswahrscheinlich der Anordnung für 78 keV Elektronen von 2.9% (was einer Steigerung um einen Faktor 3 gegenüber einer Messung ohne Mini-Orangen-Filter entspricht) und einen Abfall der Transmission um mehr als eine Größenordnung gegenüber 58 keV Elektronen. Die Nachweiswahrscheinlichkeit und der Unterdrückungsfaktor wurden anhand einer  $^{109}\text{Cd}$ -Eichprobe, das Maximum der Transmission mit Hilfe einer  $^{137}\text{Cs}$ -Quelle ermittelt.

<sup>13</sup> Für eine ausführlichere Diskussion siehe Kap. 2.3.3



**Abb. 2.10:** Aufbau des Mini-Orangen-Spektrometers. HM: Hochvakuummesszelle, VM: Vorvakuummesszelle, TP: Turbopumpe, VP: Vorpumpe, HV: Hochspannungsversorgung, VV: Vorverstärker, HP: Hochpass, Amp: Verstärker, PUR: Pile-up-Unterdrückung.

Abb. 2.10 zeigt ferner die Vakuumkomponenten des Aufbaus. Magnetfilter und Probenhalter sind durch Mikrometerschrauben entlang der Systemachse beweglich und können somit beim Probeneinbau durch ein Ventil vom stickstoffgekühlten Si(Li)-Detektor getrennt werden. Die sich so ergebende Schleusen-kammer wird nach Einbau der Probe auf  $< 10^{-4}$  mbar evakuiert, bevor das Ventil zur Detektorkammer ( $p < 10^{-6}$  mbar) geöffnet wird. Damit wird die Kondensation von Restgasen auf der Detektoroberfläche verhindert.

Der Si(Li)-Detektor (Fa. Inter-technique, sensitive Fläche:  $200 \text{ mm}^2$ , sensitive Dicke: 2 mm) wird mit einer positiven Hochspannung von 400 V betrieben. Die Vorverstärkersignale werden zur Rauschunterdrückung durch einen Hochpass geleitet und in einem mit einer Pile-up-Unterdrückungseinheit bestückten Hauptverstärker der Fa. Ortec (Model 572) weiterverarbeitet. Anschließend werden die verstärkten Signale in einem mit den Vetosignalen des Pile-up-Unterdrückungseinheit geschalteten ADC weiterverarbeitet und im Computer gespeichert. Durch die Pile-up-Unterdrückung und durch die Abschirmung der natürlichen Umgebungsstrahlung mittels Blei konnte der Untergrund im Energiebereich  $> 65 \text{ keV}$  deutlich (Faktor  $> 2$ ) reduziert werden.

Abb. 2.11 zeigt das Spektrum der  $^{179}\text{Ta}$ -Probe (TA2) mit und ohne Mini-Orange. Durch den Zentralabsorber wird die Röntgenstrahlung um ca. 2 Größenordnungen und der Untergrund oberhalb 65 keV um einen Faktor 50 reduziert.

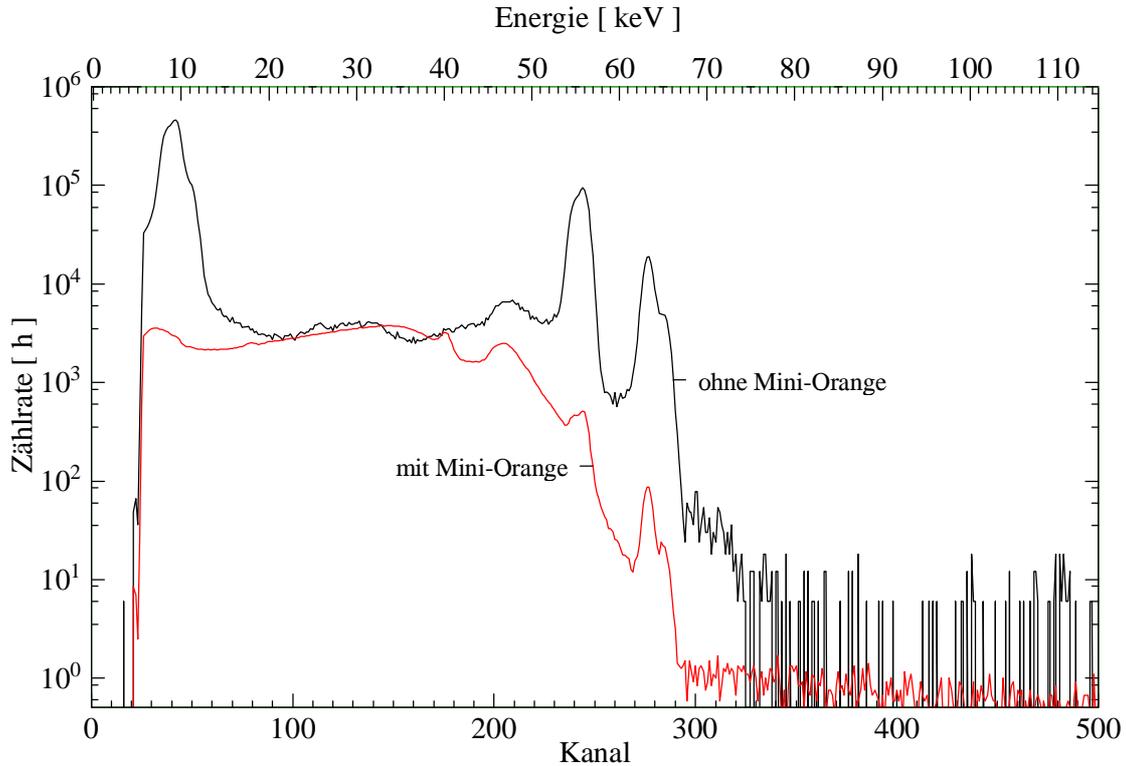


Abb. 2.11:  $^{179}\text{Ta}$ -Spektrum mit und ohne Mini-Orange.

### Bestimmung von $^{180}\text{N}$

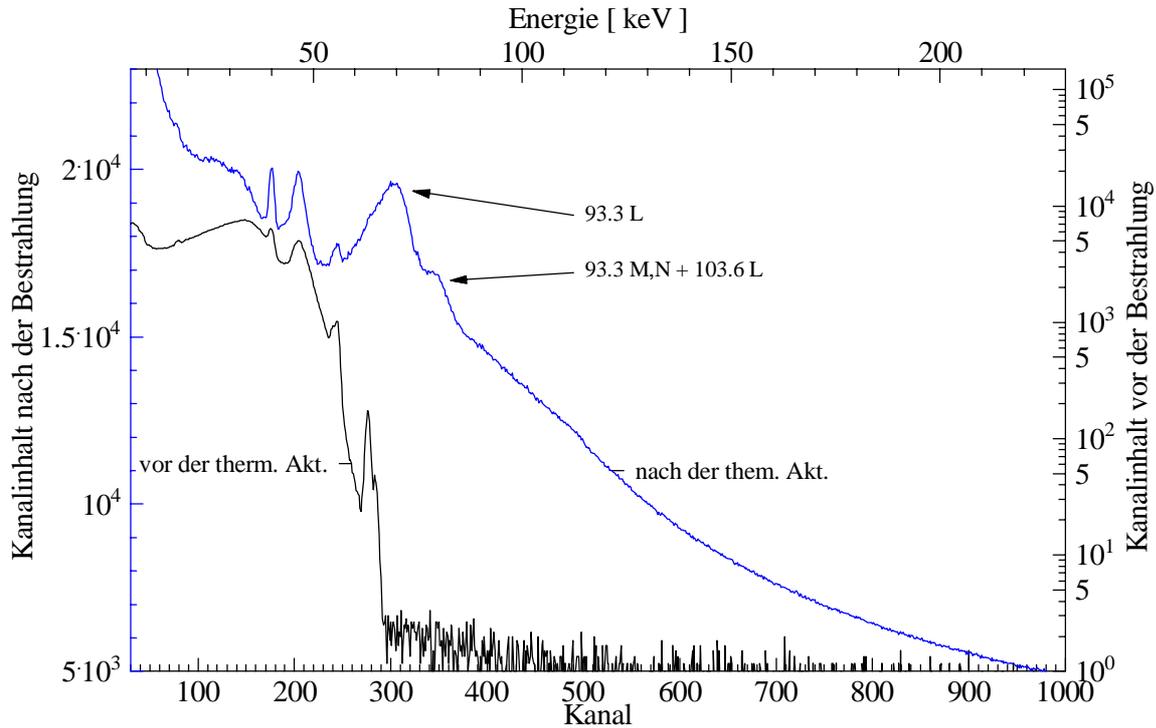
Die Zahl der aktivierten  $^{180}\text{Ta}$ -Kerne ergibt sich aus den Elektronenspektren analog zu (2.12):

$$^{180}\text{N} = \frac{1}{I_{ce} \cdot \epsilon_{ce} \cdot K_{ce} \cdot a_{ce}} \cdot \frac{c_{ce}}{f_m \cdot f_w} \cdot C_p \cdot C_{\text{SUM}} \quad (2.16)$$

Aufgrund der geringen Zählrate (ca.  $150 \text{ s}^{-1}$ ) und der geringen Nachweiswahrscheinlichkeit für Röntgenstrahlung ist  $C_p = C_{\text{SUM}} = 1$ . Die größte Unsicherheit in der Bestimmung von  $^{180}\text{N}$  ist durch den Quotienten  $\eta_{ce} = (I_{ce} \cdot \epsilon_{ce} \cdot K_{ce} \cdot a_{ce})^{-1}$  gegeben, der über den Faktor  $a_{ce}$  die Absorption und den Energieverlust der Elektronen berücksichtigt.

Die Bestimmung von  $\hbar_{ce}$  erfolgte durch die Aktivierung der Probe mit thermischen Neutronen. Hierbei wurde  $^{180}\text{N}$  nach (2.12) mittels HPGe-Detektor über die 93.3 keV  $\gamma$ -Linie bestimmt. Die anschließende Analyse von Lage, Breite und  $c_{ce}$  der Konversionselektronenlinie im Mini-Orangen-Spektrometer lieferte den Eichfaktor aus (2.16) zu  $\eta_{ce} = 437 \pm 33$ .

In Abb. 2.12 ist das Mini-Orangen-Spektrum vor und nach der thermischen Aktivierung dargestellt. Mit Pfeilen gekennzeichnet sind die Konversionslinien der 93.3 und 103.6 keV Niveaus, die allerdings relativ breit (10 keV) und um 12 keV verschoben erscheinen. Diese Energieverschiebung konnte durch die  $^{109}\text{Cd}$ -Eichprobe bestätigt werden und resultiert aus



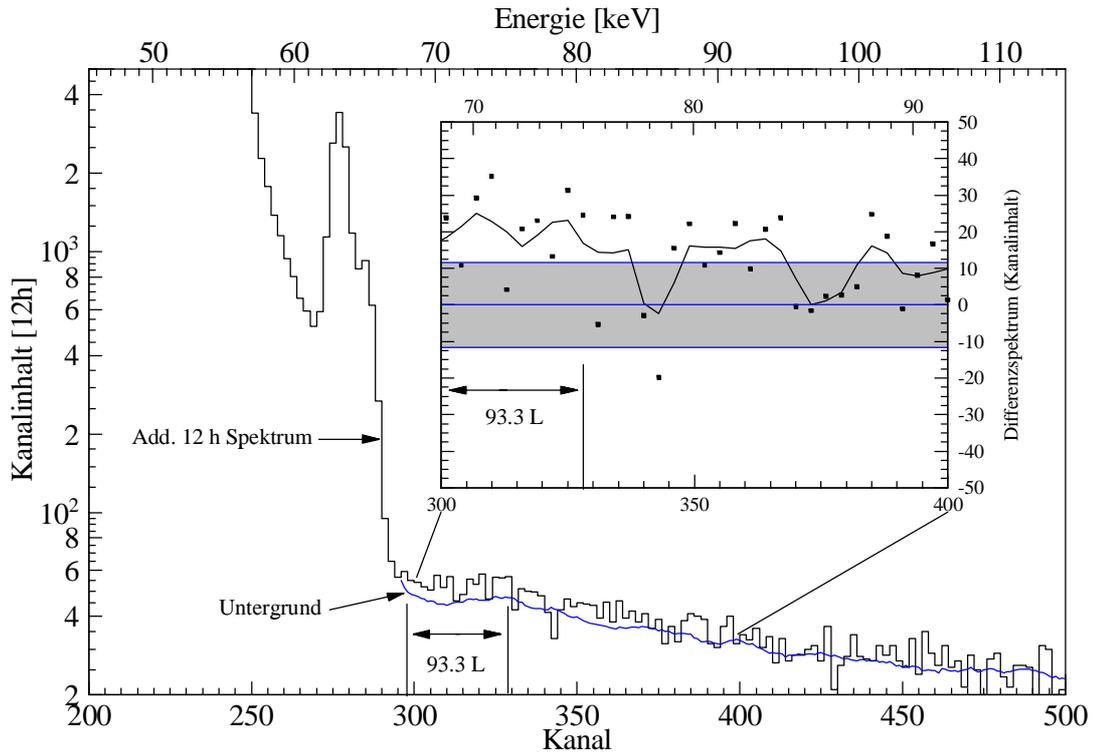
**Abb. 2.12:** Elektronenspektren (2 h Messzeit) vor und nach der thermischen Bestrahlung. Mit Pfeilen gekennzeichnet sind die Konversionslinien aus dem Zerfall von  $^{180}\text{Ta}$ .

einer Totschicht im Detektor. Die Folge dieser Energieverschiebung ist, dass etwa die Hälfte der Konversionselektronen-Ereignisse bei der 25 keV Aktivierung durch die  $K_{\beta}$ -Röntgenlinien aus der Eigenaktivität maskiert werden und zur Auswertung nicht zur Verfügung stehen.

### 2.3.3 Ergebnisse

Abb. 2.13 zeigt das Spektrum der Mini-Orange wie es sich nach 12 Stunden Messzeit durch Addition der Einzelspektren aus den drei durchgeführten Bestrahlungen ergibt. Die glatte Linie markiert den erwarteten Untergrund, der sich ebenfalls aus Addition der Untergrundmessungen für die jeweiligen Bestrahlungen ergibt. Als Untergrund wurden die Spektren verwendet, die 24 h nach der jeweiligen Aktivierung gemessen wurden. Sie zeigten keine weitere Abnahme der Zählrate im gesamten Energiebereich. Die Gesamtmesszeit für den Untergrund betrug 9.6 d, so dass eine ausreichende Statistik gewährleistet war. Man erkennt keine signifikante Erhöhung im Energiebereich der 93.3 L-Konversionslinie.

Der Ausschnitt in Abb. 2.13 zeigt das Differenzspektrum im Energiebereich 68 - 93 keV. Grau schraffiert ist der 1 Sigma Bereich des Residiums, die durchgezogene Linie verdeutlicht den mittleren Verlauf der gemessenen Datenpunkte. Man erkennt zwar, dass im Mittel die Daten, vor allem im relevanten Energiebereich, eine Überhöhung zeigen, dass allerdings die Überhöhung noch innerhalb des 1 Sigma Fehlerbereichs liegt und keine signifikante Struktur einer Konversionslinie erkennen lässt. Analysiert man die Spektren zu späteren Messzeiten, so ergibt sich zwar im Mittel eine Absenkung der Überhöhung, doch beschränkt sich diese



**Abb. 2.13:** Mini-Orangen-Spektrum und erwarteter Untergrund nach drei Bestrahlungen für 12 h Messzeit.

Abnahme nicht nur auf den Energiebereich der  $^{180}\text{Ta}^g$ -Konversionselektronenlinien, so dass von einer kurzlebigeren Untergrundaktivität ausgegangen werden muss.

Das Nullresultat kann in eine obere Schranke für den Einfangquerschnitt konvertiert werden [Hel83]. Sie ergibt sich zu:

$$\left\langle \sigma_{n,\gamma} (^{179}\text{Ta}) \right\rangle_{25 \text{ keV}} < 4.6 \text{ b}, \text{ 68\% c.l.}$$

In diesem Ergebnis ist die Korrektur für das Abweichen des experimentellen Neutronenspektrums vom idealen Maxwell-Boltzmann Spektrum schon eingearbeitet. Die Extrapolation auf 30 keV ergibt:

$$\left\langle \sigma_{n,\gamma} (^{179}\text{Ta}) \right\rangle_{30 \text{ keV}} < 4.1 \text{ b}, \text{ 68\% c.l.}$$

Obwohl das Experiment den Bereich der vorhergesagten Querschnitte gerade erreicht hat, bleibt das Ergebnis im Hinblick auf die theoretischen Werte, 1128 mb [Nem92], 3280 mb [Hol76] ohne Relevanz.

Mehrere Faktoren führten zum Nullresultat. Einerseits konnte, aufgrund von technischen Problemen am Van de Graaff Beschleuniger, nur etwa die Hälfte des erwarteten Neutronenflusses realisiert werden, andererseits wurde durch den Energieverlust der Konversionselek-

tronen und der daraus folgenden Breite und Verschiebung der Linie im Spektrum ca. 30-50% der Effizienz eingebüßt. Eine Kompensation dieser Faktoren durch weitere Bestrahlungen war angesichts der kleinen Probenmasse aus zeitlichen und technischen Gründen nicht mehr durchzuführen. Entscheidender Faktor für den Misserfolg aber war, dass trotz hervorragender chemischer Trennergebnisse die Probenmasse zu klein geriet, was ausschließlich auf die Probleme beim Aufbringen der Probe auf den Träger zurückzuführen ist.

Als eine gut geeignete Messmethode hat sich das Mini-Orangen-Spektrometer erwiesen, mit dem die Eigenaktivität der Probe hinreichend unterdrückt werden konnte. Mit der existierenden Probe waren nur geringe Zählraten von ca.  $150 \text{ s}^{-1}$  zu verzeichnen, so dass auch Messungen mit einer um einen Faktor 10 größeren Probe möglich gewesen wären.

Alternativen zu dieser Messmethode sind mit beträchtlichen Schwierigkeiten verbunden. Koinzidenzmessungen von Konversionselektronen oder  $\gamma$ 's mit den beim EC-Zerfall ausgesandten Röntgenstrahlen kommen nicht in Betracht, da wegen der geringen Probenmasse hohe Nachweiswahrscheinlichkeiten — d.h. enge Geometrien — benötigt würden, die aber aufgrund der hohen Eigenaktivität ausscheiden. Versuche, die Konversionselektronen in einer  $4\pi$ -Geometrie mit dünneren, und somit für die elektromagnetische Komponente weniger effizienten, Halbleiterzählern (PIN-Dioden) nachzuweisen, scheiterten ebenfalls an der hohen Eigenaktivität der Probe.

Eine Messung der beim  $^{180}\text{Ta}$ -Zerfall ausgesandten  $\gamma$ 's mit Hilfe eines einfachen HPGe-Zählers führt aus demselben Grund zum Misserfolg. Zwar gelingt es, die Eigenaktivität durch ein „Sandwich“ geeigneter Absorber zu reduzieren, doch werden auch die nur unwesentlich höherenergetischen  $\gamma$ 's zu stark unterdrückt. Das eigentliche Signal kann dann ebenfalls nicht vom Untergrund getrennt werden, wie Testmessungen mit der über die (d,2n)-Reaktion hergestellten und wesentlich größeren ( $1.5 \cdot 10^{15}$ )  $^{179}\text{Ta}$ -Probe zeigten. (vgl. Kap. 2.1.1).

Diese Argumente gegen eine Koinzidenzmessung oder eine  $\gamma$ -Messung gelten allerdings nur für Systeme mit wenigen Detektoren. Bei zusammengesetzten Detektorsystemen mit hoher Granularität verteilt sich die Gesamtzählrate auf die einzelnen Detektoren, so dass Zählrateneffekte nur mehr eine untergeordnete Rolle spielen. Allerdings sind solche Systeme mit großem finanziellem und technischem Aufwand verbunden und standen im Rahmen dieser Arbeit nicht zur Verfügung.

Im Prinzip wäre es denkbar, die Eigenaktivität der Probe durch die Trennung der  $^{180}\text{Ta}$  und  $^{179}\text{Ta}$ -Isotope zu unterdrücken. Allerdings erscheint diese Möglichkeit wegen der benötigten hohen Effizienz und angesichts der Auflösung verfügbarer Massenseparatoren doch unrealistisch.

Damit bleibt die Messung mittels Mini-Orangen-Spektrometer die vielversprechendste Methode, vorausgesetzt, dass eine größere Probenmasse realisiert werden kann. Da eine ausgearbeitete chemische Trennung und der Messaufbau existieren, bleibt zu hoffen, dass sich in naher Zukunft die Mittel für die Herstellung einer neuen  $^{179}\text{Ta}$ -Probe finden werden.

## Kapitel 3

# Coulombanregung von $^{180}\text{Ta}$

Bislang wurde das Problem der Bildung von  $^{180}\text{Ta}$  im s-Prozess untersucht, dieses Kapitel hingegen beschäftigt sich mit der potentiellen Zerstörung der gebildeten Kerne unter stellaren Bedingungen. Eine solche Destruktion besteht durch die Depopulierung des stabilen Isomers  $^{180}\text{Ta}^m$  über angeregte Mittlerzustände, die Zerfallskanäle sowohl zum Isomer als auch zum Grundzustand aufweisen. Die Effektivität der Umbesetzung hängt dabei kritisch von der Bevölkerung dieser Mittlerzustände im stellaren Photonenbad und damit von ihren Anregungsenergien ab.

Der Nachweis eines geeigneten Mittlerzustandes kann auf unterschiedliche Weise geführt werden. Versuche, die Übergänge zwischen Grundzustand und Isomer direkt durch traditionelle kernspektroskopische Methoden aufzuspüren, scheiterten bislang. Auch neueste Messungen [Nor96] konnten nur Übergänge innerhalb einzelner Banden im  $^{180}\text{Ta}$  beobachten, eine Verbindung zwischen Grundzustands- und Isomerenbande wurde nicht gefunden.

Eine indirekte Nachweismethode ist durch die Bestrahlung von  $^{180}\text{Ta}$  mit Photonen, d.h. durch Simulation der stellaren Bedingungen, und der anschließenden Messung der Grundzustandsaktivität, gegeben. Dies kann prinzipiell auf zwei Arten durchgeführt werden: einerseits durch Bremsstrahlung oder hochaktiven  $\gamma$ -Strahlern mit realen Photonen, andererseits mittels Coulombanregung mit virtuellen Photonen. Bremsstrahlungsexperimente waren auf diesem Wege erfolgreich, Mittlerzustände bei 2.8 MeV und 3.6 MeV mit überraschend großen integrierten Wirkungsquerschnitten zu detektieren [Col90]. Diese Mittlerniveaus werden in der stellaren Umgebung aufgrund der hohen Anregungsenergien aber kaum bevölkert und haben daher keinen Einfluss auf eine mögliche s-Prozess-Synthese. Die Existenz von Zuständen unterhalb 1.33 MeV Anregungsenergie konnten weder Collins et al. [Col90] noch Németh et al. [Nem92] experimentell ableiten. Allerdings war die Sensitivität dieser Untersuchungen durch die verfügbaren Photonenflüsse begrenzt, so dass die experimentelle Nachweisgrenze zu hoch lag, um eine für den s-Prozess relevante Thermalisierung auszuschließen.

Dagegen lässt sich mit Coulombanregung bei niedrigen Anregungsenergien eine höhere Empfindlichkeit erreichen. Dies gilt im Besonderen, wenn für den Übergang zum Mittler-niveau höhere Multipolaritäten vorausgesetzt werden.

Als Ergebnis der Bestrahlung einer natürlichen Tantalfolie mit  $^{32}\text{S}$ - und  $^{36}\text{S}$ -Ionen konnten Schlegel et al. [Sch94] eine niederenergetische Komponente in der Anregungsfunktion für die  $^{180}\text{Ta}^g$ -Ausbeute registrieren, die sich durch die Annahme eines Mittlerniveaus unterhalb 1 MeV erklären ließe. Die astrophysikalische Konsequenz wäre, dass sich die Lebensdauer von  $^{180}\text{Ta}^m$  bei hohen Temperaturen drastisch reduzierte und der Kern nicht im s-Prozess gebildet werden könnte. Wegen eines massiven Untergrundes durch Transferreaktionen am  $^{181}\text{Ta}$  basierten die Schlussfolgerungen von Schlegel et al. auf wenigen Datenpunkten, die teilweise erhebliche Fehler aufwiesen. Als Folge davon konnte auch die für den s-Prozess wichtige, genaue Lage des angenommenen Mittlerniveaus nicht ermittelt werden. Eine unabhängige Bestätigung der Ergebnisse von Schlegel et al. durch eine Wiederholung des Experimentes mit unterschiedlichen Projektilen erschien daher wünschenswert.

Die Wahl fiel auf leichte Projektilen (Protonen,  $\alpha$ -Teilchen), die im Vergleich zu Schwerionen zwar geringere Wirkungsquerschnitte zeigen, diese aber durch wesentlich höhere Ströme und längere Bestrahlungsdauern ausgeglichen werden können. Ein entscheidender Vorteil ist allerdings, dass bei geeigneter Wahl der Einschussenergie alle Untergrundreaktionen, die zu  $^{180}\text{Ta}^g$  führen könnten, ausgeschlossen werden können. Zudem lässt sich durch Vergleich von Messungen mit unterschiedlichen Ionen die Lage und Multipolarität des Übergangs besser eingrenzen.

In diesem Zusammenhang wurden zwei Coulombanregungs-Experimente durchgeführt, mit Protonen am Karlsruher Van de Graaff Beschleuniger und mit  $\alpha$ -Teilchen am Zyklotron der PTB in Braunschweig.

## 3.1 Grundlagen der Coulombanregung

Unter Coulombanregung versteht man die rein elektromagnetische Wechselwirkung zwischen Projektil und Target, wobei das Projektil nicht in den Targetkern eindringt, aber durch Austausch virtueller Photonen sowohl Target als auch Projektil in einen angeregten Zustand versetzt werden können. Im Folgenden wird nur die Anregung des Targets betrachtet.

### 3.1.1 Wirkungsquerschnitte

Die semiklassische Beschreibung der Wechselwirkung beruht auf der Näherung, dass die Anregung des Kerns einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Trajektorie des geladenen Projektils hat. Zu diesem Fall beschreibt das Projektil — analog zur Coulombstreuung — bei Annäherung an den Targetkern eine Rutherfordbahn. Die Anregung des Targetkerns errechnet sich quantenmechanisch in erster Ordnung Störungstheorie unter Voraussetzung einer schwachen Störung durch das vom vorbeifliegenden Projektil induzierte elektromagnetische Feld. Da nur die Hamiltonoperatoren für die elektromagnetische Wechselwirkung in die Berechnung eingehen, lassen sich die Wirkungsquerschnitte für diesen Prozess sehr genau bestimmen. Eine ausführliche Ableitung findet sich im Anhang. So ergibt sich der totale Wirkungsquerschnitt für elektrische Anregung der Multipolordnung  $E\lambda$ :

$$\sigma_{E\lambda} = \left( \frac{Z_p e}{\hbar v_i} \right)^2 \cdot a^{-2\lambda+2} \cdot B(E\lambda) \cdot f_{E\lambda}(\xi) \quad (3.1)$$

mit  $Z_p$ , der Kernladungszahl und  $v_i$ , der anfänglichen Geschwindigkeit des Projektils. Die halbe Strecke minimaler Annäherung (bei Rückwärtsstreuung) ist gegeben durch:

$$a = \frac{Z_p Z_T e^2}{m v_i v_f},$$

wobei  $m$  die reduzierten Masse des Systems,  $v_f$  die Geschwindigkeit des Projektils nach der Anregung und  $Z_T$  die Kernladungszahl des Targetkerns bezeichnen.

Die nuklearen Eigenschaften des Targetkerns sind in (3.1) ausschließlich durch die reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten  $B(E\lambda)$  gegeben, welche die Kernmatrixelemente der entsprechenden Multipoloperatoren enthalten.<sup>14</sup> Sie werden oft in Weisskopfeinheiten angegeben, die ein Maß für die Kollektivität des Übergangs darstellen.

Der letzte Term in (3.1) ist die klassische Wirkungsquerschnitt-Funktion der Coulombanregung,  $f_{E\lambda}$ . Sie wird durch die klassischen Bahnintegrale bestimmt und enthält die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Anregungsenergie  $\Delta E$ , ausgedrückt durch den Adiabazitätsparameter  $\xi(\Delta E/E)$ . Anschaulich betrachtet beschreibt  $\xi$  die Adiabazität der Wechselwirkung. Kurze Wechselwirkungszeiten bedeuten hohe Frequenzen im Fourierpektrum und somit die Möglichkeit energetisch höher liegenden Zustände im Targetkern anzuregen. Die klassischen Wirkungsquerschnitt-Funktionen sind in [Ald56] tabelliert. Man findet einen exponentiellen Abfall von  $f_{E\lambda}(\xi)$  für  $\xi > 1$  und  $f_{E\lambda}(\xi) \approx \text{const.}$  für  $\xi < 1$ .

Damit ergibt sich für die Wirkungsquerschnitte eine hohe Sensitivität gegenüber der Anregungsenergie. Zudem unterscheiden sich die Querschnitte von leichten Projektilen gegenüber Schwerionen deutlich durch die Abhängigkeit vom Quadrat der Kernladungszahl. Vergleicht man ferner die Coulombanregungs-Querschnitte mit den Photoabsorptions-Querschnitten, so fallen die Querschnitte der Coulombanregung mit steigender Multipolarität weitaus weniger stark ab.

Analog zu (3.1) ergeben sich die Wirkungsquerschnitte für magnetische Anregung, die allerdings im Vergleich zu den elektrischen Anregungen stark unterdrückt sind:

$$\sigma_{M\lambda} \approx \left( \frac{v}{c} \right)^2 \cdot \frac{B(M\lambda)}{B(E\lambda)} \cdot \sigma_{E\lambda} \quad (3.2)$$

Im weiteren können sie daher außer Acht gelassen werden.

<sup>14</sup> Diese sind identisch mit den Matrixelementen beim spontanen Zerfall. Für eine Definition siehe Anhang.

### 3.1.2 Gültigkeit der semiklassischen Beschreibung, Korrekturen

Die semiklassische Beschreibung kann natürlich nur eine Näherung sein. Die Güte der Näherung lässt sich anhand der dimensionslosen Parameter  $\eta$  und  $\chi$  bestimmen.

Der Sommerfeldparameter  $\eta = a/\lambda$  charakterisiert die Bewegung des Projektils und ist daher auch ein Maß für die Stärke der Wechselwirkung. Für  $\eta \gg 1$  ist die de Broglie Wellenlänge des Projektils viel kleiner als der Abstand zum Target, und das Wellenpaket des Projektils durchläuft die klassische Teilchenbahn. Im Gegensatz dazu existiert für  $\eta \leq 1$  ein Überlapp der Wellenfunktionen von Target und Projektil und entsprechend muss das Problem quantenmechanisch erfasst werden. Die Berechnung erfolgt analog zum semiklassischen Fall in erster Ordnung Störungstheorie, mit dem Unterschied, dass nun die Übergangsmatrixelemente für die Produktwellenfunktion des Gesamtsystems berechnet werden, und damit der Energieverlust des Projektils berücksichtigt wird.

Die Rechnungen wurden von Alder et al. [Ald56] für E1 und E2 durchgeführt. Man erhält für den totalen Wirkungsquerschnitt eine Gleichung analog zu (3.1), mit der quantenmechanischen  $f_{E\lambda}(\eta_i, \xi)$ -Funktion die nun zusätzlich vom Sommerfeldparameter des einlaufenden Projektils abhängt. Es zeigt sich, dass die Korrekturen für die klassischen Wirkungsquerschnitte in der Größenordnung  $1/\eta^2$  liegen und die exakt quantenmechanischen Wirkungsquerschnitte für große  $\eta$  sehr gut wiedergeben [Ald56], [Ald75]. Für Schwerionen ist die Coulombabstoßung groß und man hat für nichtrelativistische Teilchen  $\eta \gg 1$ . Für 12 MeV  $\alpha$ -Teilchen erhält man dagegen  $\eta_\alpha = 12$  und für 3.7 MeV Protonen  $\eta_p = 6$ .

Die in Kap. 3.2.3 verwendeten Wirkungsquerschnitte sind nach [Ald56] berechnet. Für E1 und E2-Übergänge ergeben sie sich quantenmechanisch, für alle anderen Multipolaritäten klassisch.

Die sowohl in der semiklassischen, als auch in der quantenmechanischen Beschreibung verwendete Störungstheorie erster Ordnung ist jedoch nur für kleine Störungen eine gute Näherung. Für größere Störungen, wie sie vor allem bei Schwerionenstößen vorkommen, müssen auch höhere Ordnungen berücksichtigt werden<sup>15</sup>. Anschaulich betrachtet entsprechen diese höhere Ordnungen mehrfachen, sukzessiven Anregungen von Zuständen im Targetkern. Beispiele für Anregungen zweiter Ordnung sind der Reorientierungsprozess [McD64] und, aufgrund der großen kollektiven Übergangsstärken, die doppelte E2-Anregung innerhalb einer Rotationsbande [Ald56]. Dieser letzte Effekt ist ein Beispiel dafür, dass ein direkter Übergang zwar stark unterdrückt (z.B.:  $0^+ \rightarrow 4^+$ ), aber durch doppelte E2-Übergänge ( $0^+ \rightarrow 2^+ \rightarrow 4^+$ ) dennoch angeregt werden kann. Ein Maß für die Stärke der Störung ist durch den Parameter  $\chi$  gegeben:

$$\chi^\lambda = \pm \sqrt{P^\lambda(\vartheta = \pi, \xi = 0)},$$

mit der Wahrscheinlichkeit  $P^\lambda$  für eine Anregung in erster Ordnung Störungstheorie (zur Multipolordnung  $\lambda$  und in Rückwärtsrichtung). Die Störungstheorie erster Ordnung ist praktikabel für  $\chi^\lambda < 0.4$ , wobei die Korrekturen für den Wirkungsquerschnitt der Form  $\sigma = \sigma(1 + \chi^\lambda + (\chi^\lambda)^2 + \dots)$  entsprechen [McD64]. Für Protonen und  $\alpha$ -Teilchen sind sie im vorliegenden Fall vernachlässigbar.

<sup>15</sup> Vorausgesetzt die Reihe konvergiert.

Relativistische Effekte und Screeningeffekte durch Targetelektronen spielen für die verwendeten Einschussenergien ( $E_p=3.7$  MeV,  $E_\alpha=12-20$  MeV) ebenfalls keine Rolle.

### 3.1.3 Integrale Ausbeuten

Bei den durchgeführten Experimenten wurden relativ dicke Tantalfolien (0.05 - 0.09 mm) bestrahlt, so dass die Ausbeute an  $^{180}\text{Ta}^g$ -Kernen durch den über die Trajektorie der Projektile integrierten Wirkungsquerschnitt abhängt. Diese integrale Ausbeute ist definiert durch:

$$Y_{E\lambda} = \frac{N_{\text{akt.}}}{N_{\text{Proj.}}} = N_{\text{Target}} \cdot \int_0^{E_0} \frac{\sigma_{E\lambda}(E)}{dE/dx(E)} dE, \quad (3.3)$$

wobei  $N_{\text{akt.}}$ , für die Zahl der aktivierten Kerne,  $N_{\text{Proj.}}$ , für die Zahl der eingefallenen Projektile und  $N_{\text{Target}}$ , für die Dichte der Targetkerne pro  $\text{cm}^3$  stehen.  $E_0$  bezeichnet die Einschussenergie und  $dE/dx(E)$ , den Energieverlust der Ionen. Die Berechnung des Integrals (3.3) erfolgte numerisch, wobei die Werte für den Energieverlust aus Ziegler et al. [Zie80] entnommen wurden.

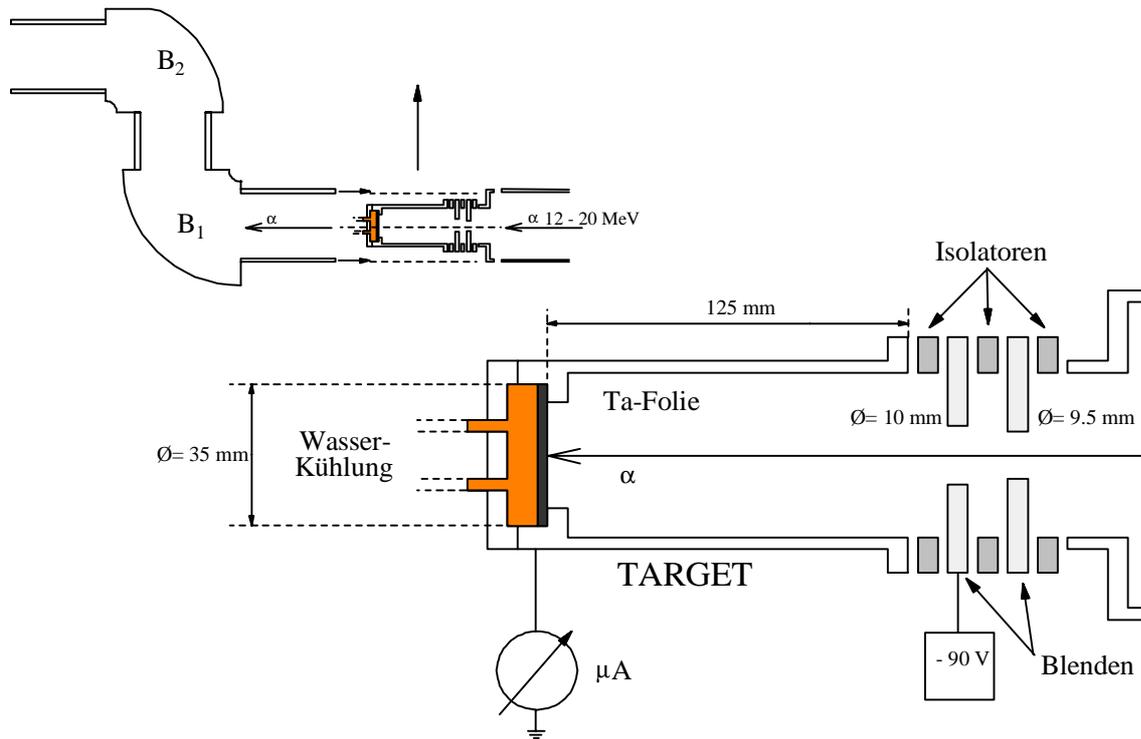
## 3.2 Experimente

Bei den Experimenten war eine Tantalfolie in natürlicher Isotopenzusammensetzung zuerst einem Protonen- oder  $\alpha$ -Strom ausgesetzt. Anschließend wurde versucht, die Depopulierung des Isomers anhand der in der Folie induzierte  $^{180}\text{Ta}^g$ -Aktivität nachzuweisen. Die Problematik dieser Messungen beruht auf der äußerst geringen natürlichen Isotopenhäufigkeit von  $^{180}\text{Ta}$  (0.012%), die bereits im Bereich der Verunreinigungen der Tantalfolie liegt, so dass Untergrundreaktionen den Nachweis der  $^{180}\text{Ta}^g$ -Aktivität erschweren.

### 3.2.1 Coulombanregung mit $\alpha$ -Teilchen

#### 3.2.1.1 Bestrahlung am Zyklotron

Die Bestrahlungen wurden am Zyklotron der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig durchgeführt. Die Einschussenergien der  $\alpha$ -Teilchen variierten im Bereich von 12 bis 20 MeV und lagen damit noch deutlich unterhalb der Coulombbarriere ( $E_B = 24$  MeV).



**Abb. 3.1:** Bestrahlungsposition und Targetanordnung am Zyklotron.

Abb. 3.1 zeigt den Targetaufbau bei den Bestrahlungen. Das eigentliche Target mit dem Blendensystem ist vergrößert dargestellt. Die  $\alpha$ -Teilchen werden in der wassergekühlten Tantalfolie völlig abgebremst. Um eine möglichst gleichmäßige Wärmebelastung der Folie zu erreichen, wurde der Strahl stark defokussiert und durch eine erste Blende auf ca. 10 mm Durchmesser begrenzt. An der zweiten Blende lag zur Unterdrückung der Sekundärelektronen eine negative Spannung von -90 V an. Target und Blenden waren aus diesem Grund isoliert montiert.

Die Targets bestanden aus 0.05 bis 0.09 mm dicken, metallischen Tantalfolien mit 35 mm Durchmesser und natürlicher Isotopenzusammensetzung. Überwiegend wurden dafür Folien mit 99.9% Reinheit der Fa. Goodfellow verwendet.<sup>16</sup>

Die Strommessung erfolgte absolut, wobei die annähernd konstanten Ströme, die je Bestrahlung zwischen 8-17  $\mu\text{A}$  betragen, mittels Stromintegrator in Abschnitten von einer Minute aufgezeichnet wurden. Aufgrund von Blasenbildungen (vor allem bei den niedrigeren Einschussenergien) oder Durchschüssen (bei zu guter Fokussierung) waren größere Ströme kaum möglich. Eine Restgasionisation im Targetbereich war bei den verwendeten Strahlrohrdrücken vernachlässigbar. Wegen anfänglicher Isolationsschwierigkeiten wurden einige Bestrahlungen ohne Sekundärelektronenunterdrückung durchgeführt. Die entsprechende Korrektur wurde nachträglich durch Variation der Strahlparameter ermittelt, sie war aufgrund der geometrischen Anordnung des Targets allerdings klein (0.5 - 0.8  $\mu\text{A}$ ) (vgl. Kap. 3.2.1.3).

<sup>16</sup> Es zeigte sich allerdings, dass der durch Verunreinigungen im Target induzierte radioaktive Untergrund bei herkömmlichen Tantalfolien nicht größer war. Daher wurden zum Teil auch gewöhnliche Folien als Targets verwendet. Versuche, die Verunreinigungen durch Ausheizen und/oder Waschen im Säurebad zu reduzieren, waren erfolglos.

Die Energie der  $\alpha$ -Teilchen wurde aus dem Magnetfeld zweier Umlenkmagnete bestimmt. Diese Umlenkmagnete waren hinter der Targetposition lokalisiert, so dass die Energiebestimmung nicht in situ erfolgen konnte, sondern vor jeder Bestrahlung durch Abmontieren des Targetaufbaus und Durchverbinden des Strahlrohres ermittelt werden musste. Dies ist im linken oberen Teilbild von Abb. 3.1 skizziert. Zur Kontrolle wurde die Energie einige Male nach der Bestrahlung zusätzlich bestimmt ohne dass sich dabei nennenswerte Veränderungen ergaben.

Insgesamt wurde die Anregungskurve für neun verschiedene Energien durchfahren. Die Bestrahlungsdauer variierte dabei je nach Energie (abhängig vom induzierten Untergrund) zwischen 10 h und 12 min (siehe auch Tab. 3.3 auf S.58).

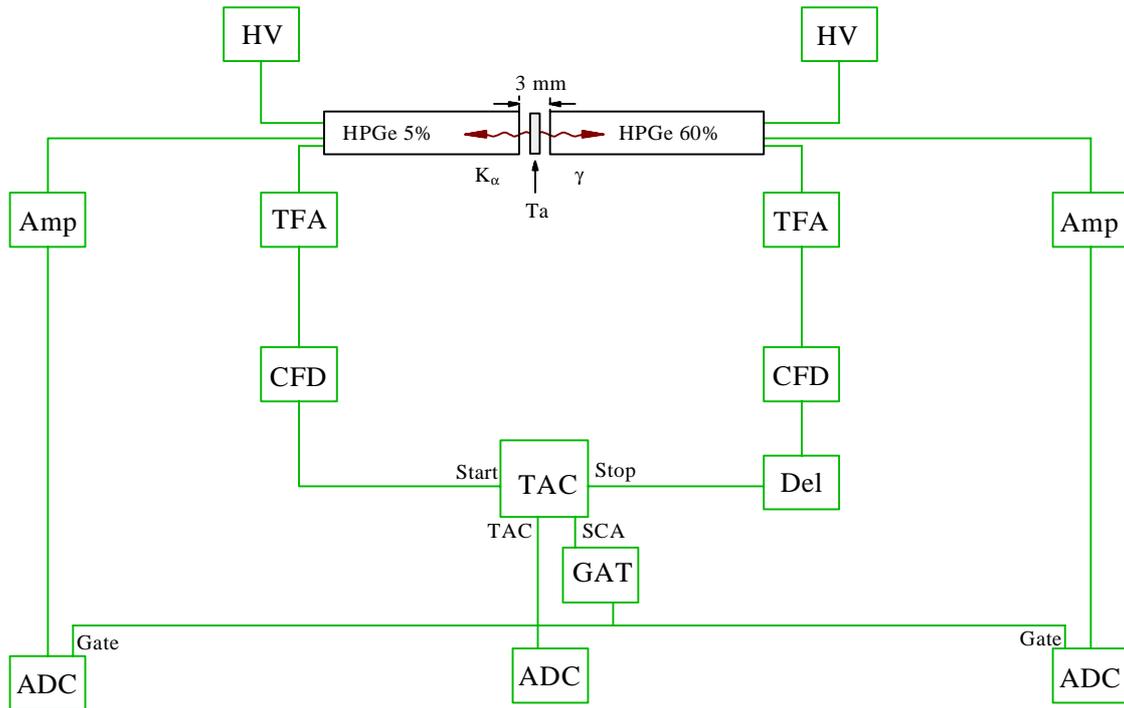
### 3.2.1.2 Bestimmung der induzierten Aktivität, Ausbeuten

Der Nachweis der  $^{180}\text{Ta}^g$ -Aktivität durch Auszählen der beim Zerfall ausgesandten Röntgen- oder  $\gamma$ -Strahlung (vgl. Tab. 2.5) war wegen der beträchtlichen Untergrundaktivitäten nicht möglich. Eine der stärksten induzierten Aktivitäten war das über die Reaktion  $^{181}\text{Ta}(\alpha, n)$  entstandene  $^{184}\text{Re}$ , welches starke  $\gamma$ -Linien im gleichen Energiefenster wie  $^{180}\text{Ta}^g$  aufweist. So wird die K-Röntgenstrahlung aus  $^{180}\text{Ta}^g$  durch entsprechende Röntgenlinien aus dem EC-Zerfall von  $^{184}\text{Re}$  und durch in der Folie induzierte Ta-Röntgenstrahlung überlagert. Die etwas weniger häufigen  $\gamma$ -Linien (93.3, 103.6 keV) verschwinden zum einen im Comptonuntergrund anderer hochenergetischer Linien, zum anderen ist die 93.3 keV  $\gamma$ -Linie durch die weitaus häufigere  $\gamma$ -Linie der über  $^{64}\text{Zn}(\alpha, n\beta^+)$  produzierten  $^{67}\text{Ga}$ -Aktivität verdeckt. Dieses  $^{67}\text{Ga}$  wird, wie viele andere Untergrundaktivitäten, an Verunreinigungen der Größenordnung 1 - 10 ppm in der Tantalfolie gebildet.

Eine deutliche Reduzierung des Comptonuntergrunds und eine Eliminierung der störenden  $^{67}\text{Ga}$ -Aktivität erreicht man durch eine koinzidente Messung der beim EC-Zerfall von  $^{180}\text{Ta}$  emittierten K-Quanten und der 93.3 keV  $\gamma$ -Linie (siehe Abb. 1.2). Wegen der geringen Größe des Signals wurden nur die intensiveren  $K_\alpha$ -Röntgen für die Auswertung herangezogen und eine möglichst hohe Effizienz durch eine enge Geometrie des Messaufbaus realisiert.

Die Detektoranordnung bestand aus einem 5% HPGe-Detektor (Typ: Planar, Kristalldurchmesser 50 mm, Kristalllänge 10 mm) und einem 60% HPGe-Detektor (Typ: Coaxial, Kristalldurchmesser 69.6 mm, Kristalllänge 69 mm). Bei einem Abstand der Detektoren von 3 mm erhält man damit annähernd eine  $4\pi$ -Anordnung. Die Nachweiswahrscheinlichkeit der Detektoren im Bereich 50-100 keV wurde mit Standard-Eichquellen ( $^{241}\text{Am}$  und  $^{109}\text{Cd}$ ) ermittelt (siehe Tab. 3.2 auf S. 56).

Das Blockschaltbild des Messaufbaus ist in Abb. 3.2 gezeigt. Im äußeren Zweig werden die Vorverstärkersignale der Detektoren verstärkt und in Analog-zu-Digitalkonvertern (ADC) analysiert. Im inneren Zweig werden die Signale in einem Timing Filter Amplifier geformt, anschließend in einem Constant Fraction Discriminator digitalisiert und die Zeitdifferenz der Signale beider Detektoren mittels Zeit-zu-Pulshöhenkonverter gemessen. Echte Koinzidenzen zeichnen sich durch eine Überhöhung im Zeitspektrum der Signale aus. Durch Ereignisse in diesem Zeitfenster werden mittels Gate and Delay Generator die Eingänge der ADC des Energiezweiges auf Empfang geschaltet. Das Zeitspektrum wird unabhängig davon ebenfalls aufgezeichnet. Alle drei ADC werden koinzident von einem Rechner ausgelesen und die resultierenden Spektren während einer Messzeit von ca. 20 h alle 1 - 2 h gespeichert.



**Abb. 3.2:** Blockschaltbild der Koinzidenzmessung. HV: Hochspannungsversorgung, TFA: Timing Filter Amplifier, CFD: Constant Fraction Discriminator, Del: Verzögerung, TAC: Zeit-zu-Pulshöhenkonverter, GAT: Gate and Delay Generator, ADC: Analog-zu-Digitalkonverter.

Vor und nach jeder koinzidenten Messung wurden die Spektren unabhängig voneinander (ohne Koinzidenzanforderung) aufgezeichnet, um die Zählraten der radioaktiven Beiprodukte zu bestimmen.

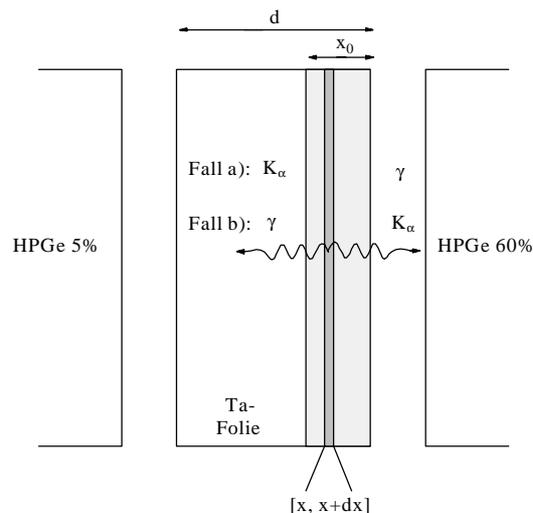
Die Zahl der aktivierten  $^{180}\text{Ta}$ -Kerne am Ende der Bestrahlung ergibt sich aus der Zahl der gemessenen  $\gamma$ - $K_{\alpha}$ -Koinzidenzen  $c_{\gamma-K_{\alpha}}$ , gemäß

$$N^{180} = \frac{c_{\gamma-K_{\alpha}}}{I_{\gamma} \cdot P_K \cdot I_{K_{\alpha}} \cdot f_m \cdot f_w \cdot \epsilon_{\gamma} \cdot \epsilon_{K_{\alpha}} \cdot a_{\gamma-K_{\alpha}}} \cdot C_P^{\gamma} \cdot C_{\text{SUM}}^{\gamma} \cdot C_P^{K_{\alpha}} \cdot C_{\text{SUM}}^{K_{\alpha}} \quad (3.4)$$

mit den auf S. 25 definierten Korrekturfaktoren  $f_w$ ,  $f_m$ , und

- $I_{\gamma}$ : absolute Linienintensität der 93.3 keV  $\gamma$ -Linie,  $I_{\gamma} = 0.0451$  (16) aus [NNDC];
- $\epsilon_{\gamma}$ : Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors bei 93.3 keV;
- $P_K$ : Wahrscheinlichkeit, dass beim EC-Zerfall ein Loch in der K-Schale entsteht,  $P_K = 0.809$  (7) aus [NNDC];

- $I_{K_\alpha}$  :  $K_\alpha$ -Emissionswahrscheinlichkeit für ein Loch in der K-Schale,  
 $I_{K_\alpha} = 0.744$  (12) aus [TRI86];
- $\varepsilon_{K_\alpha}$  : Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors bei der  $K_\alpha$ -Energie;
- $C_P$ : Pile-up-Korrektur für die entsprechende  $K_\alpha$ - oder  $\gamma$ -Linie. Der Pile-up-Effekt ist ein reiner Zählrateneffekt und muss deshalb für jeden Detektor einzeln betrachtet werden. Die Korrektur wurde anhand der Zählraten ausgesuchter Monitorlinien in den nicht koinzident aufgenommenen Spektren, die vor und nach jeder Koinzidenzmessung aufgezeichnet wurden, bestimmt.
- $C_{SUM}$ : Summations-Korrektur für die entsprechende  $K_\alpha$ - oder  $\gamma$ -Linie. Zusätzliche koinzidente Ereignisse beim Zerfall von  $^{180}\text{Ta}^g$  können durch die Röntgenkaskaden entstehen. Der Korrekturfaktor für die  $K_\alpha$ - und  $\gamma$ -Linien ist  $C_{SUM} = 1/(1 - \omega_L a_L \varepsilon_L)$ , mit  $\omega_L$ , der Fluoreszenzausbeute für ein Loch in der L-Schale (aus [TRI86]),  $\varepsilon_L$ , der Nachweiswahrscheinlichkeit der Detektoren für L-Röntgen und  $a_L$ , der Absorption von L-Röntgenstrahlung in der Tantalfolie. Wegen der hohen Absorption der L-Röntgenstrahlung in der Tantalfolie und im Eintrittsfenster der Detektoren werden die Korrekturfaktoren  $C_{SUM}^i = 1.00$ .
- $a_{\gamma-K_\alpha}$  : Korrekturfaktor für die Absorption der Photonen in der Tantalfolie, der sich aus  $a_{\gamma-K_\alpha} = a_\gamma (d - x) \cdot a_{K_\alpha}(x)$  ergibt, wobei  $a_\gamma(x) = \exp(-\mu_{\text{eff}} E_\gamma(x))$ , die Absorption der Photonen mit Energie  $E_\gamma$  aus der aktivierten Schicht  $[x, x+dx]$  bedeutet und  $d$ , die Dicke der Folie bezeichnet (vgl. Abb. 3.3).  $a_{\gamma-K_\alpha}$  lässt sich analytisch für die Dicke der aktivierten Schicht  $x_0$  berechnen, die sich selbstkonsistent aus den Coulombanregungskurven ergibt (siehe auch Kap 3.2.1.3 Fehlerbetrachtung). Aufgrund der unterschiedlichen Absorption der  $K_\alpha$ - und  $\gamma$ -Strahlen muss die Absorption für die Fälle a) und b) in Abb. 3.3 getrennt betrachtet werden.



**Abb. 3.3:** Veranschaulichung der Absorption in der Folie

In der verwendeten engen Geometrie gelangen nicht nur die senkrecht zur Folie emittierten Photonen in die Detektoren, sondern vor allem auch solche, die einen längeren Weg in der Folie zurücklegen. Es ergibt sich im Mittel ein effektiver Absorptionskoeffizient  $\mu_{\text{eff}} = k \cdot \mu_{\perp}$ , welcher experimentell anhand von Eichquellen und verschiedener Foliendicken für jeden Detektor einzeln bestimmt wurde. Typische Werte für  $k$  lagen zwischen 1.45-1.60, woraus  $a_{\gamma-K_\alpha} = 0.5 - 0.6$  folgte.

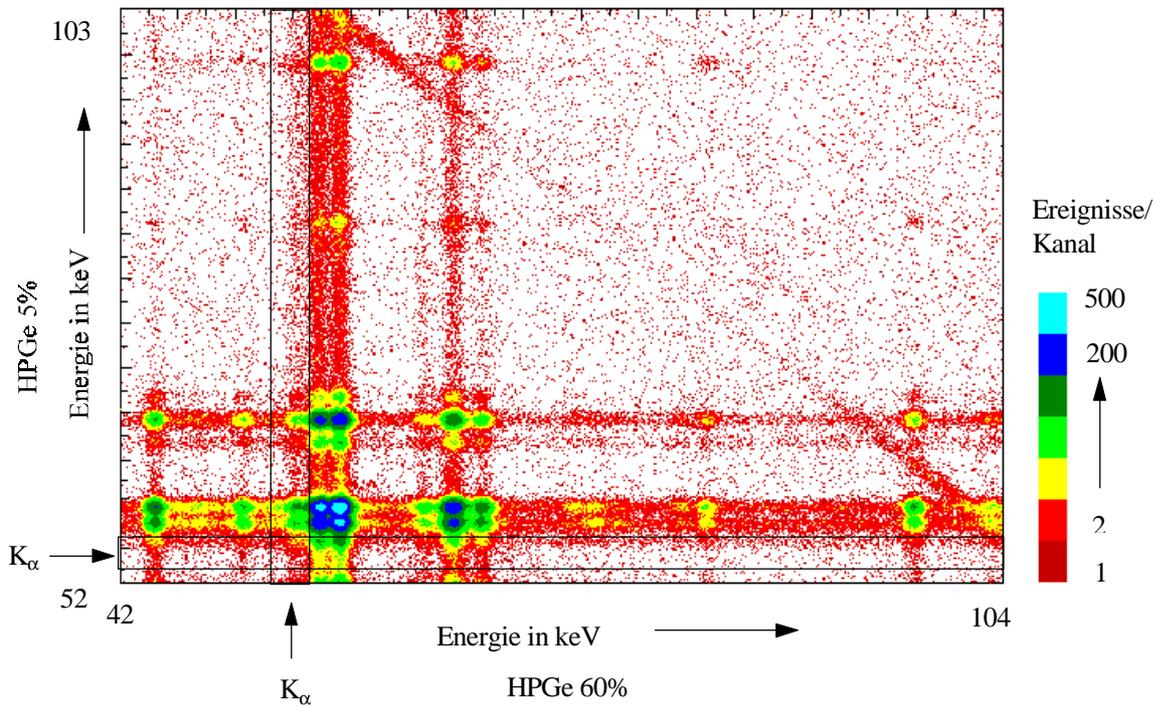


Abb. 3.4: Zweidimensionales HPGe-Spektrum der 13.86 MeV Bestrahlung nach 12 h Messzeit.

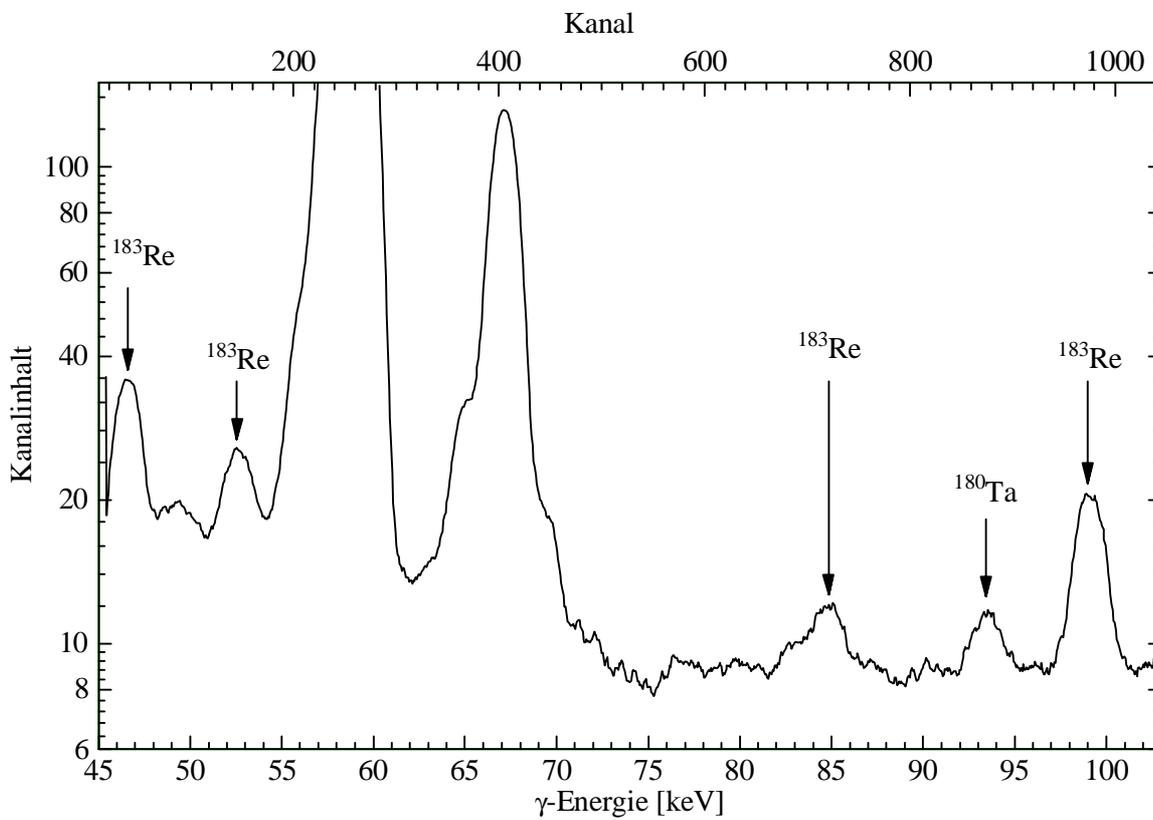


Abb. 3.5: Spektrum des 5% HPGe-Detektors koinzident zum  $K_{\alpha}$ -Fenster des 60% HPGe-Detektors.

### Bestimmung von $c_{\gamma-K_\alpha}$

Abb. 3.4 zeigt das zweidimensional aufgetragene  $\gamma$ -Spektrum für die koinzidenten Ereignisse der Messung bei 13.86 MeV nach 12 h Messzeit. Hier und entsprechend in der Projektion der Abb. 3.5 sind koinzidente Ereignisse in den Energiefenstern [55 - 60 keV] und [65 - 70 keV], die von  $\gamma$ - $K_\alpha$  und  $\gamma$ - $K_\beta$ -Koinzidenzen aus den EC-Zerfällen von  $^{184}\text{Re}$  und  $^{183}\text{Re}$  stammen, deutlich zu erkennen. Dieser Rhenium Untergrund entsteht durch  $^{181}\text{Ta}(\alpha, n)$ ,  $^{181}\text{Ta}(\alpha, 2n)$  und  $^{180}\text{Ta}(\alpha, n)$  Reaktionen und ist vor allem bei den höheren Einschussenergien der  $\alpha$ -Teilchen dominant. Ferner wird durch diese und andere Zerfälle, die Ta-Röntgenstrahlung in der Folie induzieren, ein zusätzlicher Untergrund verursacht.

Für beide Detektoren sind die Energiefenster der  $K_\alpha$ -Linien aus dem  $^{180}\text{Ta}$ -Zerfall schwarz eingezeichnet. Echte Ereignisse,  $c_{\gamma-K_\alpha}$  und  $c_{K_\alpha-\gamma}$  ergeben sich in diesen Fenstern aus Überhöhungen im Untergrund bei 93.3 keV. Abb. 3.5 zeigt das geglättete Spektrum zum  $K_\alpha$ -Fenster des 60% HPGe-Detektors von Abb. 3.4. Man erkennt neben den  $\gamma$ -Linien aus  $^{183}\text{Re}$ -Zerfall (99.1, 84.7, 82.9, 52.6, 46.5 keV) deutlich die 93.3 keV -Linie aus dem Zerfall von  $^{180}\text{Ta}$ .

Abb. 3.6 zeigt einen Vergleich der Spektren mit und ohne Koinzidenzanforderung mit dem in Abb. 3.5 gezeigten energiediskriminierten Spektrum. Die oberste Kurve entspricht einer Messung ohne Koinzidenzanforderung. Man erkennt bei 93.3 keV die  $\gamma$ -Linie aus dem  $^{67}\text{Ga}$ -Zerfall, die im Koinzidenzspektrum ohne Energiediskriminierung (mittlere Kurve) verschwindet. Des weiteren ist der Untergrund durch das Setzen des  $K_\alpha$ -Fensters um ca. zwei bis drei Größenordnungen gegenüber dem unabhängig aufgenommenen Spektrum reduziert, so dass man in der Lage ist, auch kleine Signale ( $< 10$  Ereignisse/ h) ausfindig zu machen. Die Größe der detektierten  $^{180}\text{Ta}^g$ -Signale lag zwischen 70 - 400 Ereignissen bei 12 - 20 h Messzeit.

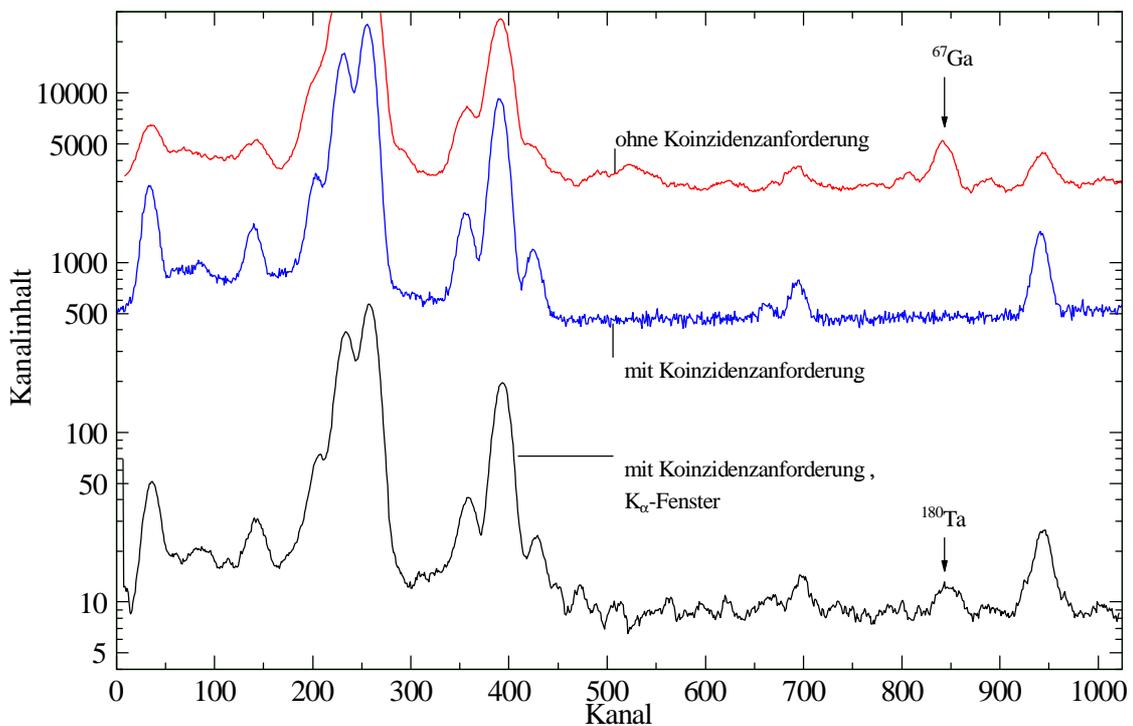


Abb. 3.6: Vergleich der Spektren mit und ohne Koinzidenzanforderung. Man beachte das Verschwinden der 93.3 keV Untergrundlinie von  $^{67}\text{Ga}$  bei Einschalten der Koinzidenzanforderung. Die  $^{180}\text{Ta}^g$ -Aktivität wird schließlich durch die weitere Einschränkung auf das  $K_\alpha$ -Fenster sichtbar.

Die Halbwertszeit der 93.3 keV Linie konnte aufgrund der niedrigen Zählrate nicht verfolgt werden. Allerdings ist die Linie für kurze Messzeiten nicht vom Untergrund zu trennen, ebenso verschwindet sie wieder für lange Messzeiten im Untergrund, woraus eine Halbwertszeit im Bereich 4 - 12 h abgeleitet wurde.

Aufgrund der Einschränkung für den Bereich der Halbwertszeit und der Beobachtung, dass sich eine Überhöhung beim Durchfahren verschiedener Schnitte im Spektrum nur für das  $K_{\alpha}$ -Fenster zeigte und kein anderer bekannter Zerfall diese Koinzidenzsignatur aufweist, konnten diese Ereignisse eindeutig dem Zerfall von  $^{180}\text{Ta}^g$  zugeordnet werden. Damit ist jede Fehlinterpretation der Signale ausgeschlossen. Dies erscheint im Hinblick auf die Vielfalt der induzierten Zerfälle wichtig und wird durch Abb. 3.6 eindrucksvoll bestätigt. Es sollte angemerkt werden, dass dieser koinzidente Nachweis im vorliegenden Experiment zum ersten Mal angewandt wurde, während sich alle früheren Experimente auf den Nachweis der beim EC-Zerfall von  $^{180}\text{Ta}$  emittierten Hf-Röntgenstrahlung beschränkten. Es ist kaum anzunehmen, dass die von Verunreinigungen bedingten Untergrundaktivitäten bei Schwerionen-Experimenten wesentlich kleiner ausfallen, so dass die Signale von Schlegel et al. die Unsicherheit bergen, durch eine Verunreinigung vorgetäuscht worden zu sein. Neuere Schwerionen-Experimente scheinen dies auch zu bestätigen (siehe auch Kap. 3.2.3 Diskussion der Ergebnisse).

Bei Messungen, die kein Signal zeigten (für  $E_{\alpha} > 16$  MeV), ergab sich eine obere Schranke [Hel83], wobei in die Berechnung die Zahl der gemessenen Ereignisse, der erwartete Untergrund und der statistische Fehler des Untergrundes eingingen. Die Bestimmung des Untergrundes für  $c_{\gamma-K_{\alpha}}$  erfolgte im  $K_{\alpha}$ -Fenster durch Interpolation der Ereignisse in den 5 keV breiten Energiebereichen um die 93.3 keV  $\gamma$ -Linie. Die zur Auswertung herangezogenen Ereignisse bei 93.3 keV entsprachen einem Energiefenster, in dem 95.5% der Ereignisse zu erwarten waren. Die Grenzen wurden jeweils in den  $K_{\alpha}$ -Fenstern mit dem kleinsten Untergrund bzw. der größten Nachweiswahrscheinlichkeit bestimmt. Die Schranken sind mit einem Konfidenzlevel von 90% angegeben, das in etwa die Nachweisgrenze ( $\approx 2.5 \sigma$ ) eines detektierbaren Signals widerspiegelt.<sup>17</sup>

### Integrale Ausbeuten

Die integrale Ausbeute errechnet sich mit (3.3) und (3.4) zu:

$$Y = \frac{{}^{180}N}{N_{\alpha} \cdot f_b} = \frac{1}{N_{\alpha} \cdot f_b} \cdot \frac{1}{I_{\gamma} \cdot P_K \cdot I_{K_{\alpha}} \cdot f_w \cdot f_m} \cdot \frac{c_{\gamma-K_{\alpha}}^{K_{\alpha}-\gamma}}{\epsilon} \cdot C_P, \quad (3.5)$$

mit der kombinierten Pile-up-Korrektur  $C_P = C_P^{5\%} \cdot C_P^{60\%}$  und dem gewichteten Mittel  $c_{\gamma-K_{\alpha}}^{K_{\alpha}-\gamma}/\epsilon$  aus  $c_{\gamma-K_{\alpha}}/\epsilon_{\gamma} \epsilon_{K_{\alpha}} a_{\gamma-K_{\alpha}}$  und  $c_{K_{\alpha}-\gamma}/\epsilon_{K_{\alpha}} \epsilon_{\gamma} a_{K_{\alpha}-\gamma}$ .

Ferner ist in (3.5) der Zerfall der aktivierten  $^{180}\text{Ta}$ -Kerne während der Bestrahlung durch den Korrekturfaktor  $f_b$  berücksichtigt (vgl. Kap. 2).

<sup>17</sup> Entsprechend wurden die Schranken für die Protonenmessung berechnet.

### 3.2.1.3 Fehlerbetrachtung

Der Fehler in der Bestimmung der Ausbeuten ergibt sich durch quadratische Addition der einzelnen Anteile entsprechend Gleichung (3.5), die in Tab. 3.1 zusammengefasst sind und im Folgenden näher erläutert werden.

**Tab. 3.1:** Zusammenfassung der Fehlerquellen in der Bestimmung der Ausbeuten.

		Größe	Fehler in %
systematisch	Bestrahlung	$E_\alpha$	0.3
		$N_\alpha$	1.5 - 3.6
		$f_b$	< 0.1
-----			
	Literatur	$I_\gamma$	3.5
		$I_{K_\alpha}$	1.6
		$P_K$	0.9
-----			
	Messung	$C_P$	4.5 - 12.3
		$f_w$	0.1
		$f_m$	< 0.1
		$a_{\gamma-K_\alpha}$	7.0
		$\varepsilon_{\gamma,K_\alpha}$	1.0-1.2
-----			
statistisch		$c_{\gamma-K_\alpha}^{K_\alpha-\gamma}$	12.9 - 55.3

### Zahl der koinzidenten Ereignisse

Die Unsicherheit in der Zahl der koinzidenten Ereignisse  $c_{\gamma-K_\alpha}^{K_\alpha-\gamma}$  setzt sich aus dem systematischen Fehler in der Bestimmung des Energiefensters der 55 keV-Schnitte — zurückzuführen auf die Unsicherheiten in der Energieeichung und in der Halbwertsbreite der Linien — und aus dem statistischen Fehler der 93.3 keV Linie zusammen. Aufgrund zahlreicher bekannter Linien im relevanten Energiebereich von 50-100 keV ist der systematische Fehler sehr klein (< 0.5%) und wird vom statistischen Fehler (> 12.3 %) dominiert. Letzterer ergibt sich aus dem gewichteten Mittel der Berechnung der Ausbeuten aus  $c_{\gamma-K_\alpha}$  und  $c_{K_\alpha-\gamma}$ .

### Nachweiswahrscheinlichkeiten

Die Nachweiswahrscheinlichkeit der Detektoren,  $\varepsilon_\gamma$ , wurde anhand der monoenergetischen Eichquellen  $^{109}\text{Cd}$  ( $E_\gamma = 88.0$  keV),  $^{241}\text{Am}$  ( $E_\gamma = 59.5$  keV) und  $^{57}\text{Co}$  ( $E_\gamma = 122.1$  keV) ermittelt und anschließend auf 55 keV und 93.3 keV extrapoliert.

Im Bereich um 60 keV kann die Nachweiswahrscheinlichkeit der Detektoren als konstant betrachtet werden, so dass der Fehler durch die Extrapolation auf 55 keV vernachlässigt werden kann. Dies gilt ebenso für die Effizienz des 60% HPGe-Detektor bei 93.3 keV. Für den 5% HPGe-Detektor erhält man die Nachweiswahrscheinlichkeit durch Skalierung des Wertes bei 88.0 keV mit der Absorptionswahrscheinlichkeit von Germanium unter Beachtung der Kristalldicke. Der Fehler für diese Prozedur lässt sich durch lineare Interpolation der gemessenen Werte bei 88.0 und 122.1 keV ermitteln und liegt bei 2%. Es zeigte sich, dass die Effizienz des 5% HPGe-Detektors kaum kleiner, dafür aber die Untergrundrate deutlich geringer (ca. Faktor 3) war, so dass zwei kleine Detektoren vorteilhafter gewesen wären, die jedoch leider nicht zur Verfügung standen.

**Tab. 3.2:** Nachweiswahrscheinlichkeiten der Detektoren.

$E_\gamma$	$\varepsilon_\gamma$ ( HPGe 5% ) in %	$\varepsilon_\gamma$ (HPGe 60%) in %
55 keV ( $K_\alpha$ )	$31.1 \pm 1.0$	$32.2 \pm 1.1$
93.3 keV	$31.1 \pm 1.2$	$32.2 \pm 1.1$

Aufgrund der engen Geometrie haben kleine Änderungen in der Position der Probe und der Detektoren große Effekte auf die Nachweiswahrscheinlichkeit. Daher wurden die Folien mit Hilfe eines Probenhalters positioniert. Dennoch ergeben sich Unsicherheiten im Abstand von ca. 1 mm durch Wölbungen und Blasenbildung an der Oberfläche der Folie, bzw. durch die

mechanische Positionierung der Detektoren zueinander. Ebenso besteht eine Unsicherheit in Bezug auf eine seitliche Verschiebung, hervorgerufen durch einen nicht zentrierten Strahlfleck. Die dadurch entstehenden Fehler wurden anhand von Testmessungen mit obigen Eichquellen ermittelt und liegen für beide Effekte bei 2%.

Der Gesamtfehler für  $\varepsilon_\gamma$  ergibt sich durch quadratische Addition der einzelnen Komponenten und ist zusammen mit den Nachweiswahrscheinlichkeiten in Tab. 3.2 aufgelistet.

### Absorption

Die Absorptionskorrektur  $a_{\gamma-K_\alpha}$  ist durch den effektiven Absorptionskoeffizienten  $\mu_{\text{eff}} = k \cdot \mu_\perp$ , durch die Foliendicke  $d$  und durch die Dicke der aktivierten Schicht  $x_0$  bestimmt. Dabei sind die Unsicherheiten in  $d$  und  $x_0$  von geringerer Bedeutung, da einerseits die Dicke der Folie über das Gewicht sehr genau bestimmt werden kann und andererseits  $a_{\gamma-K_\alpha}$  nur wenig von der Dicke der aktivierten Schicht abhängt.<sup>18</sup> Es ist  $\Delta d = 0.3\%$  und  $\Delta a(d, x_0) < 1\%$ . Der Fehler  $\Delta a_{\gamma-K_\alpha}$  erhält man daher aus dem Fehler im Absolutwert von  $\mu_\perp$ , der von Saluman und Hubbel [Sal88] zu 2% angegeben wird, und aus dem Fehler in der Bestimmung von  $k$ . Letzterer wurde experimentell zu 5% ermittelt, woraus sich der Gesamtfehler zu  $\Delta a_{\gamma-K_\alpha} = 7\%$  errechnet.

<sup>18</sup> Dies liegt an der nur leicht unterschiedlichen Absorption der  $K_\alpha$  und  $\gamma$ -Strahlen.

### Einschussenergie

Die Einschussenergie der  $\alpha$ -Teilchen wurde aus dem Magnetfeld der Umlenkmagnete in Abb. 3.1 vor jeder Bestrahlung bestimmt. Die systematische Unsicherheit dafür beträgt 0.3%. Zur Kontrolle der Energiestabilität des Zyklotrons wurde die Energiebestimmung zusätzlich einige Male nach der Bestrahlung wiederholt. Dabei konnte  $E_\alpha$  auf besser als 30 keV reproduziert werden.

### Strommessung

Die Zahl der einfallenden  $\alpha$ -Teilchen  $N_\alpha$  wurde aus dem absolut gemessenen Teilchenstrom berechnet. Die Unsicherheit resultiert daher aus der Genauigkeit der Strommessung, welche durch Dunkelströme (Einfänge mittels Massenschleifen,  $\Delta I = 250$  nA) und durch die Eichgenauigkeit des Stromintegrators ( $\pm 0.6\%$ ) limitiert war. Anfänglich musste bei einigen Messungen die Sekundärelektronenunterdrückung aufgrund von Isolationsschwierigkeiten abgeschaltet werden. Die Korrekturen wurden nachträglich ermittelt, sie waren aber wegen der Geometrie des Targets relativ klein (500-800 nA). Entsprechend ergab sich eine geringe Unsicherheit von  $\pm 1.5\%$ . Je nach Bestrahlung variierte damit der Gesamtfehler  $\Delta N_\alpha$  im Bereich 1.5 - 3.6%.

### Zerfall während der Bestrahlung

Der Korrekturfaktor  $f_b$  errechnet sich aus (2.14). Die gut bekannte  $^{180}\text{Ta}^g$ -Halbwertszeit und die Messung des Teilchenstroms als Funktion der Zeit ermöglichten eine exakte Bestimmung dieser Korrektur, der entsprechende Fehler war vernachlässigbar ( $< 0.1\%$ ).

### Pile-up-Korrektur

Die Pile-up-Korrektur  $C_p$  wurde nicht wie üblich mittels Pulser ermittelt, da sich infolge der Pulsereinspeisung eine Störung in den Vorverstärkersignalen ergeben hätte. Infolgedessen wurde die Korrektur anhand ausgesuchter Monitorlinien aus nicht koinzident aufgezeichneten Spektren bestimmt, die bei stark unterschiedlichen Zählraten vor und nach jeder Koinzidenzmessung aufgenommen wurden. Daraus konnte für jeden Detektor eine relative Pile-up-Korrektur ermittelt werden. Aus der Analyse aller Bestrahlungen ergaben sich relative  $C_p$ -Werte zu unterschiedlichen Zählraten und somit eine Systematik, aus der jeder Zählrate durch Extrapolation eine absolute Pile-up-Korrektur zugeordnet werden konnte. Die Unsicherheit in der Korrektur liegt zum einen an den statistischen Fehlern der gemessenen Monitorlinien und zum anderen an der Extrapolation, welche den Fehler in den meisten Fällen dominierte. Es ergaben sich typische Werte von  $\Delta C_p \approx 6\%$  für das Produkt der Pile-up-Korrekturen beider Detektoren. Die größeren Werte in Tab. 3.1 resultieren dabei überwiegend aus den hochenergetischen Bestrahlungen ( $\geq 16$  MeV), die meist höhere Zählraten zur Folge hatten.

### Sonstige Fehlerquellen

Die Fehler von  $I_\gamma$ ,  $I_{K_\alpha}$  und  $P_K$  sind durch die Literaturwerte gegeben. Wegen der kleinen Unsicherheiten in der Bestimmung der Messzeit  $RT$ , der Wartezeit  $t_w$ , und der Zerfallskonstanten  $\lambda$ , ergeben sich vernachlässigbare Fehler für  $f_m$  und  $f_w$  ( $< 0.1\%$ ).

### 3.2.1.4 Ergebnis

In Tab. 3.3 sind die Bestrahlungsparameter und die Ergebnisse zusammengefasst. Es konnten Signale bei Einschussenergien bis 16 MeV beobachtet werden. Um Pile-up- und Totzeit-Effekte in einer noch tolerierbaren Größenordnung zu halten, waren bei höheren Einschussenergien durch die exponentiell wachsende Untergrundzählrate nur noch kürzere Bestrahlungszeiten möglich. Als Folge davon ergaben sich relativ hohe obere Grenzen für die Ausbeuten. Den Fehler der Ausbeuten erhält man durch quadratische Addition von statistischem und systematischem Fehler. Die oberen Schranken für die Ausbeuten sind mit 90% Konfidenzlevel angegeben und repräsentieren die Nachweisgrenze für ein tatsächliches Signal. Die Fehler der Schranken beziehen sich auf den systematischen Fehler. Eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse findet sich in Kap. 3.2.3.

**Tab. 3.3:** Bestrahlungsparameter und Ergebnisse der Bestrahlung mit  $\alpha$ -Teilchen.

Energie [MeV] $\Delta E = 50 \text{ keV}$	Bestrahlungsdauer [h]	mittlerer Strom [ $\mu\text{A}$ ]	Dicke der Ta-Folie [ $\mu\text{m}$ ]	Ausbeute [ $10^{-13}$ ]
12.03	6.80	14.3	47	$1.14 \pm 0.35$
13.00	9.82	14.3	72	$2.67 \pm 1.49$
13.86	5.58	12.8	59	$2.06 \pm 0.53$
13.89	10.86	14.0	60	$4.66 \pm 0.91$
14.90	9.70	15.3	61	$9.87 \pm 1.86$
15.45	5.63	13.6	47	$9.01 \pm 2.52$
16.05	4.08	8.4	70	$< 27.4 \pm 4.3 \text{ (syst.)}$
17.03	1.38	9.8	70	$< 34.2 \pm 5.1 \text{ (syst.)}$
18.00	0.50	13.8	91	$< 44.4 \pm 5.9 \text{ (syst.)}$
20.08	0.20	14.1	91	$< 224 \pm 26 \text{ (syst.)}$

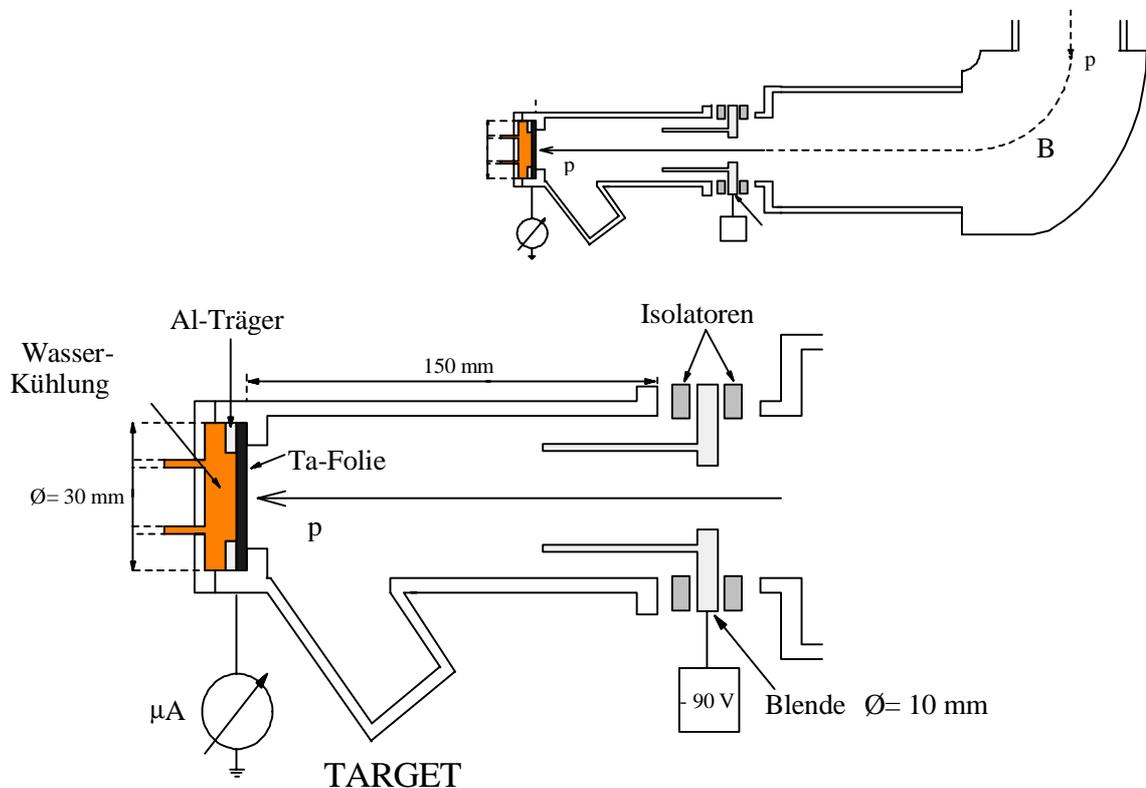
## 3.2.2 Coulombanregung mit Protonen

### 3.2.2.1 Bestrahlung am Van de Graaff Beschleuniger

Die Bestrahlungen wurden am Karlsruher 3.75 MV Van de Graaff Beschleuniger durchgeführt, wobei Protonen mit Einschussenergien von 3.00, 3.25, 3.50 und 3.70 MeV, d.h. bis hin zur Maximalenergie des Beschleunigers, verwendet.

Abb. 3.7 zeigt die Bestrahlungsposition mit dem für die Bestrahlungen eingesetzten Aufbau von Sauter [Sau96]. Der Protonenstrahl vom Beschleuniger wird durch einen Umschaltmagneten und eine Blende in das Target geleitet, an dessen Ende die Tantalfolien angebracht sind. Um eine effektivere Kühlung der schlecht wärmeleitenden Tantalfolien zu ermöglichen, wird dabei der Strahldurchmesser mittels elektromagnetischer Wobbelung auf 6 mm Durchmesser aufgeweitet. Das Target und die wassergekühlte Blende, an der zur Sekundärelektronenunterdrückung eine negative Spannung von -90 V angelegt ist, sind isoliert montiert, so dass sich ein Faradaybecher für die Strommessung ergibt. In das Target ist eine Rückstreuammer integriert, die in diesen Bestrahlungen aber keine Verwendung fand.

Die Targets waren durch metallische, 0.05 mm dicke Tantalfolien natürlicher Isotopenzusammensetzung ( $\varnothing = 30$  mm) abgeschlossen, die auf einen Al-Träger aufgeklebt und mit Silberpaste leitend verbunden waren. Die Folien wurden an der Rückseite über ihre gesamte Fläche mit entsalztem Wasser gekühlt.



**Abb. 3.7:** Bestrahlungsposition und Targetaufbau bei der Protonenbestrahlung.

Die Strommessung erfolgte wiederum absolut, wobei durch die Geometrie und durch die Sekundärelektronenunterdrückung eine vollständige Ladungssammlung gewährleistet war. Die Ströme wurden mit einem Stromintegrator (Modell 9394, Fa. Ortec) digitalisiert und der zeitliche Verlauf in Schritten von 1 Minute im Rechner aufgezeichnet. Die Protonenströme waren auf  $50\ \mu\text{A}$  begrenzt, da größere Teilchenflüsse leicht zu Durchschüssen führten.

Die Einschussenergie der Protonen wurde aus dem Magnetfeld des Umlenkmagneten bestimmt, dessen Eichung von Sauter im Energiebereich 1.9 - 2.7 MeV überprüft wurde [Sau96].

### 3.2.2.2 Bestimmung der induzierten Aktivität, Ausbeuten

Wegen Untergrundreaktionen an Verunreinigungen im Target ist, analog zur Coulombanregung mit  $\alpha$ -Teilchen, der einfache Nachweis der beim  $^{180}\text{Ta}^g$ - Zerfall ausgesandten  $\gamma$ - und Röntgenstrahlung nicht möglich. Störende Untergrundaktivitäten entstehen durch den  $\beta^+$ -Zerfall von  $^{18}\text{F}$  ( $t_{1/2}=109.7\ \text{min}$ ) und durch den EC-Zerfall von  $^{67}\text{Ga}$ , wobei  $^{18}\text{F}$  über (p, $\gamma$ ) und (p,n)-Reaktionen am Sauerstoff in großem Maße gebildet wird und für den hohen Ta-Röntgen- und Comptonuntergrund zu Beginn der Messungen verantwortlich ist. Noch störender wirkt sich wiederum die am Zink produzierte  $^{67}\text{Ga}$ -Aktivität aus, die, wie schon bei der Aktivierung mit  $\alpha$ -Teilchen, die 93.3 keV  $\gamma$ -Linie aus dem  $^{180}\text{Ta}^g$ -Zerfall überlagert. Die Bestrahlungen bei 3.0, 3.25 und 3.5 MeV waren aus diesem Grund erfolglos. Bei den Bestrahlungen mit 3.70 MeV Einschussenergie wurde die Messung der Aktivität auf die bei der Coulombanregung mit  $\alpha$ -Teilchen beschriebenen Koinzidenztechnik (Kap. 3.2.1.2.) umgestellt. Im Folgenden wird nur auf die Unterschiede eingegangen.

In Abb. 3.2 ist der Messaufbau gezeigt. Wiederum erfolgte die Messung in enger Geometrie mit 3 mm Abstand zwischen den Detektoren. Anstelle des 5% HPGe-Detektors wurde mit einem 30% HPGe-Detektor gearbeitet. Ebenso ergaben sich leichte Veränderungen im Zeitzweig, da die Vorverstärkersignale des 60% HPGe-Detektors bei niedrigen Energien mit den zum Zeitpunkt der Messung zur Verfügung stehenden TFA nicht ausreichend verstärkt werden konnten. Aus diesem Grund wurden die TFA- und CFD-Module durch gewöhnliche Spektroskopieverstärker (Modell 572 Fa. Ortec) und Einkanaldiskriminatoren (Modell 551 Fa. Ortec) ersetzt. Wegen der etwas langsameren Signalverarbeitung mussten die Energiesignale durch Einfügen von Pulsformern (Modell 442 Fa. Ortec) zwischen Verstärker und ADC verzögert werden. Es zeigte sich, dass diese Änderungen aber keine nennenswerte Verschlechterung gegenüber dem Aufbau in Abb. 3.2 zur Folge hatte.

Da die anfänglich hohe Untergrundzählrate mit der Halbwertszeit von  $^{18}\text{F}$  ( $t_{1/2} = 109.7\ \text{m}$ ) korrelierte und somit nach einigen Stunden stark abgenommen hatte, wurden beide Detektoren mit 5 cm Blei gegenüber der natürlichen Untergrundstrahlung abgeschirmt.

Die Zahl der aktivierten Kerne und die Ausbeuten ergeben sich aus (3.4) und (3.5), wobei die Nachweiswahrscheinlichkeit des 30% HPGe-Detektors nach dem Verfahren in Kap. 3.2.1.2 zu  $\varepsilon_\gamma(55\ \text{keV}) = 33.6\ (5)\%$  und  $\varepsilon_\gamma(93.3\ \text{keV}) = 33.3\ (5)\%$  bestimmt wurde. Zur Auswertung wurden nur Spektren mit kleinen Zählraten verwendet, so dass Pile-up-Korrekturen vernachlässigbar wurden.

### 3.2.2.3 Fehlerbetrachtung

Dominierende systematische Fehlerquellen sind wiederum durch die Absorption der Photonen im Tantalblech und durch die Literaturwerte der Linienintensitäten gegeben. Die Fehler

der Messgrößen  $f_w$ ,  $f_m$ , und  $f_b$  errechnen sich analog zu den Größen in Tab. 3.1. Die Korrekturfaktoren  $C_{\text{SUM}}$  und  $C_P$  wurden in (3.4) vernachlässigt, wofür ein systematischer Fehler von jeweils  $< 0.5\%$  abgeschätzt wurde. Weitere Änderungen zeigen sich nur für die Strommessung und für die Einschussenergie der Protonen.

### Strommessung

Eventuelle Verlustmechanismen (z.B. Ladungsabtransport durch die Wasserkühlung, schlechte Isolation, Dunkelströme) konnten in Vorversuchen ausgeschlossen werden. Die absolute Eichung erfolgte über eine Konstantstromquelle (Batterie), die zuvor mit einem geeichten Piko-Amperemeter ausgemessen wurde. Bei Strömen von  $50 \mu\text{A}$  ist der Gesamtfehler für die Strommessung  $\Delta N_p < 1\%$ .

### Energie

Aus den Eichmessungen von Sauter [Sau96] ergibt sich  $\Delta E_p = 20 \text{ keV}$ .

In Tab.3.4 sind die Änderungen in den Unsicherheiten gegenüber der Aktivierung mit  $\alpha$ -Teilchen aufgelistet, die Fehler aller anderen Größen von (3.5) finden sich in Tab. 3.1.

**Tab.3.4:** Gesamtfehler und Änderung der systematischen Fehler im Vergleich zur Aktivierung mit  $\alpha$ -Teilchen.

Größe	$E_p$	$N_p$	$C_P$	$C_{\text{SUM}}$	$\varepsilon_\gamma$	Gesamt
Fehler in %	0.5	$< 1.0$	$< 0.5$	$< 0.5$	1.0-1.5	8.4

### 3.2.2.4 Ergebnis

Bei Untergrundzählraten für  $c_{\gamma-K_\alpha}$  von weniger als 5 - 10 Ereignissen/h ( $t_w > 6 \text{ h}$ ) konnte in keiner Bestrahlung ein Signal beobachtet werden. Somit ergibt sich eine obere Schranke für die Ausbeute, die in Tab. 3.5 zusammen mit den Bestrahlungsgrößen für die Messung bei 3.70 MeV angegeben ist. Da mit der Einschussenergie auch die Sensitivität der Coulombanregung mit Protonen abnimmt, haben die Schranken bei niederen Energien keine Relevanz.

**Tab. 3.5:** Bestrahlungsparameter und Ergebnisse der Protonenbestrahlung.

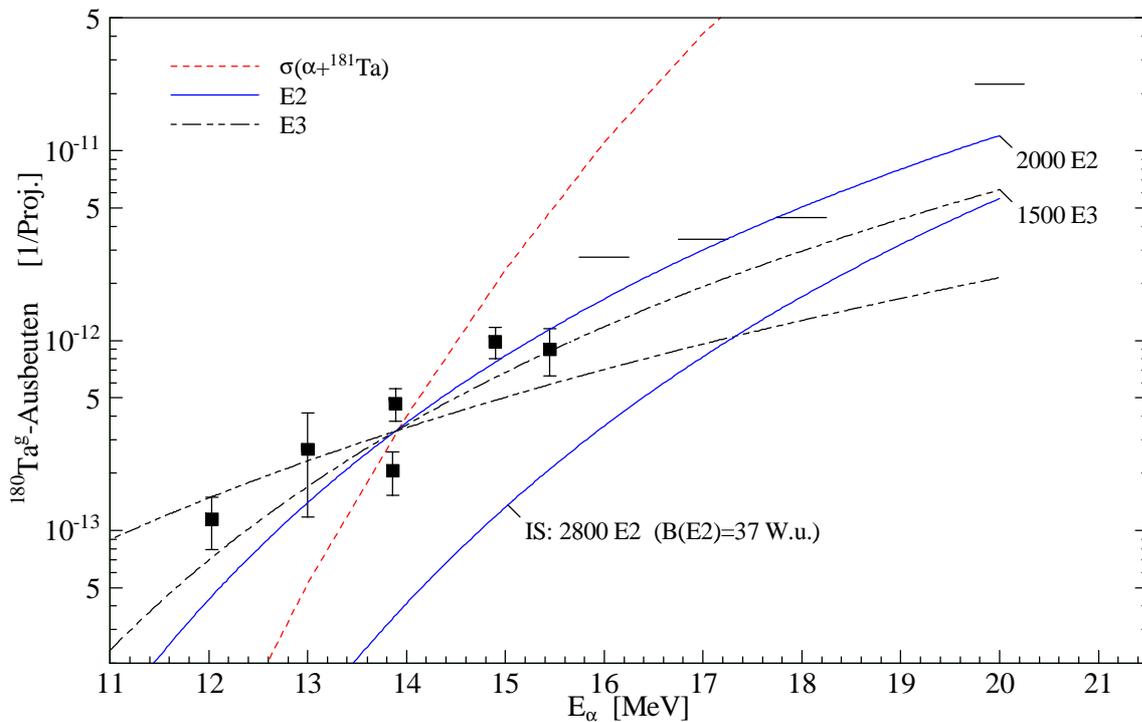
Energie [MeV]	Bestrahlungsdauer [h]	mittlerer Strom [ $\mu\text{A}$ ]	Dicke der Ta-Folie [ $\mu\text{m}$ ]	Ausbeute [ $10^{-15}$ ]
3.70	15.42	50.1	46	$< 6.03 \pm 0.51$ (syst.)

### 3.2.3 Diskussion der Ergebnisse

#### 3.2.3.1 Ergebnisse der Coulombanregung mit $\alpha$ -Teilchen

Durch die Koinzidenzanforderung sind die Signale aus der Aktivierung mit  $\alpha$ -Teilchen eindeutig dem Grundzustandszerfall von  $^{180}\text{Ta}$  zuzuordnen. Wie in Kap. 3.2.1.2 dargestellt, war der Nachweis aber durch starke Untergrundreaktionen sowohl am  $^{181}\text{Ta}$ , als auch an sehr geringen Verunreinigungen ( $< 1 - 10$  ppm) in der Tantalfolie behindert. Daher sind auch entsprechende zu  $^{180}\text{Ta}^g$  führende Kernreaktionen a priori nicht auszuschließen. Die Zahl der energetisch möglichen Kernreaktionen ist allerdings beschränkt. Potentielle Reaktionen sind  $^{176}\text{Lu}(\alpha, \gamma)$  und  $^{177}\text{Hf}(\alpha, p)$ , die aber beide aufgrund der zu kleinen Lu-, und Hf-Häufigkeiten in der Folie ausgeschlossen werden können, sowie  $^{181}\text{Ta}(\alpha, \alpha n)$  und die nukleare inelastische Streuung  $^{180}\text{Ta}(\alpha, \alpha')$ . Letztere ergibt sich bei den verwendeten  $\alpha$ -Energien ebenfalls als vernachlässigbar [Kie97].

Abb. 3.8 zeigt die graphische Darstellung der Ergebnisse von Tab. 3.3 mit den auf die Datenpunkte bei 13.9 MeV normierten E2, E3-Coulombanregungsfunktionen zu verschiedenen Anregungsenergien des Mittelzustandes. Ferner ist die mit dem optischen Modell berechnete Anregungsfunktion für den Eingangskanal der  $^{181}\text{Ta}(\alpha, \alpha n)$  Compoundkernreaktion [Men96], ebenfalls normiert auf 13.9 MeV, eingezeichnet. Aufgrund der gemessenen Signale *und* Schranken sowie der wesentlich steiler verlaufenden Anregungsfunktion, kann die Compoundkernreaktion ausgeschlossen werden. Berücksichtigt man noch den Ausgangskanal, so wird diese Schlussfolgerung wegen des höheren Coulombwalls noch unterstrichen.



**Abb. 3.8:** Ergebnisse aus der Aktivierung mit  $\alpha$ -Teilchen. Die Coulombanregungsfunktionen für E2-, E3-Übergänge verlaufen deutlich flacher als ein eventueller Untergrund durch die Compoundkernreaktion  $^{181}\text{Ta}(\alpha, \alpha n)$ .

Die direkten Anteile der  $(\alpha, \alpha n)$ -Reaktion wurden unter Annahme der Anregung in die Dipol- und Quadrupol-Riesenresonanz mit ECIS94 abgeschätzt [Kie97]. Man erhält für  $E_\alpha = 15.5$  MeV um mehr als 3 Größenordnungen kleinere Ausbeuten, so dass damit auch kleinere nukleare Beiträge zu obigen Datenpunkten vernachlässigt werden können. Die Annahme, dass die nachgewiesene  $^{180}\text{Ta}$ -Aktivität durch Coulombanregung ausgelöst wurde, ist damit gerechtfertigt.

In Abb. 3.8 ist auch die Anregungsfunktion eines angenommenen E2-Übergangs zum bekannten Mittelzustand bei 2.8 MeV eingezeichnet. Dieser Beitrag muss offensichtlich zur Erklärung der gemessenen Ausbeute ausgeschlossen werden<sup>19</sup>.

Die E2-, E3-Anregungsfunktionen zu verschiedenen hypothetischen Mittelzuständen sind, um eine optimale Anpassung an die Daten zu erhalten, auf 13.9 MeV normiert. Ihr Verlauf ändert sich im relevanten Energiebereich aber kaum, so dass daraus keine zwingende Aussage über die Lage des Mittelzustands abgeleitet werden kann. Die beste Anpassung der Anregungskurven an die experimentellen Daten erreicht man aber für einen Mittelzustand mit 1.5 MeV Anregungsenergie. Zu diesem Ergebnis kommt man unabhängig von der angenommenen Multipolarität des Übergangs, da sich die Form der Anregungsfunktionen verschiedener Multipolaritäten kaum unterscheidet.

Wie aus der E2-Anregungsfunktion für 2.0 MeV hervorgeht, ergibt sich durch die Nullergebnisse oberhalb 16 MeV eine obere Grenze für die Lage des Mittelzustands von ca. 2.2 MeV.

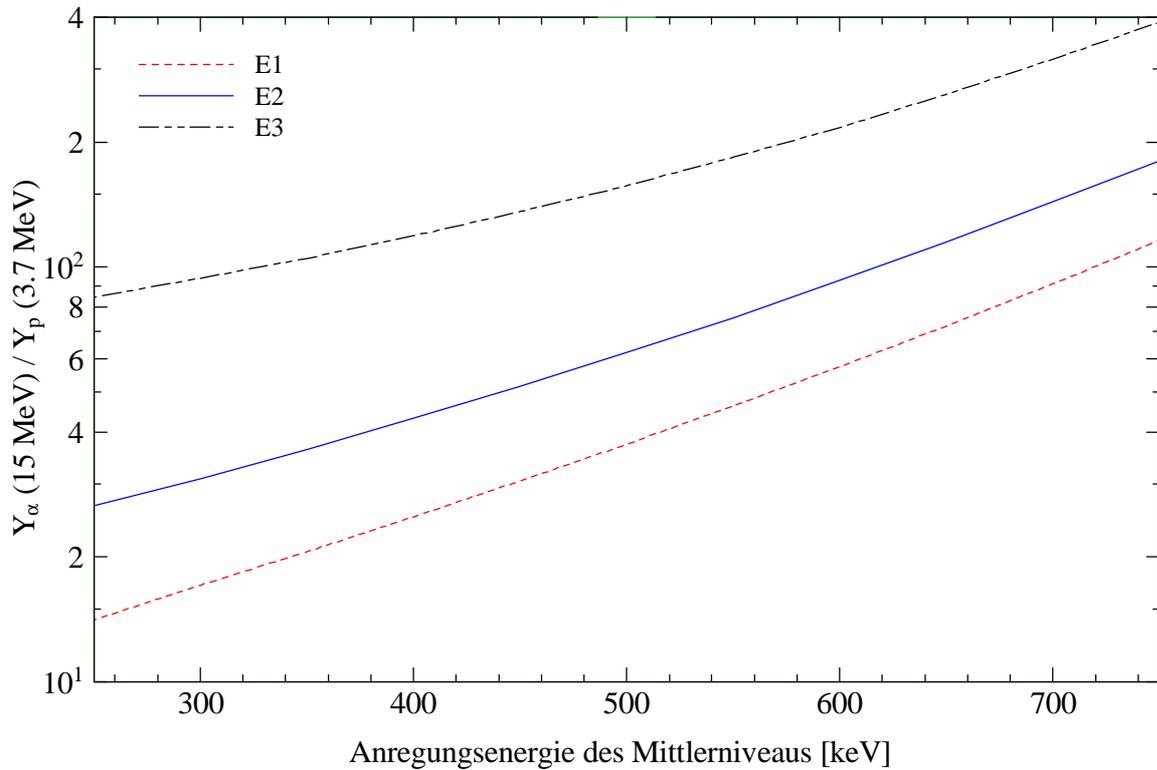
### 3.2.3.2 Vergleich zur Protonenmessung

Abb. 3.9 zeigt die Sensitivität der Protonenausbeuten gegenüber den  $\alpha$ -Ausbeuten in Abhängigkeit von der Multipolarität und der Anregungsenergie des Mittelzustands. Man erkennt: *a*) je höher die Multipolarität des Übergangs, desto geringer wird die Anregungswahrscheinlichkeit durch Protonen gegenüber der durch  $\alpha$ -Teilchen, und *b*) eine annähernd exponentielle Abhängigkeit der Sensitivität von der Lage des Mittelzustands. Das Nullergebnis der Protonenmessung erlaubt daher, vor allem bei niedrigen Multipolaritäten, untere Grenzen für die Anregungsenergien zu setzen. Mit den oberen Grenzen aus der Form der Anregungskurven in Abb. 3.8 erhält man daher erlaubte Bereiche für die Anregungsenergie und entsprechend für die reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten.

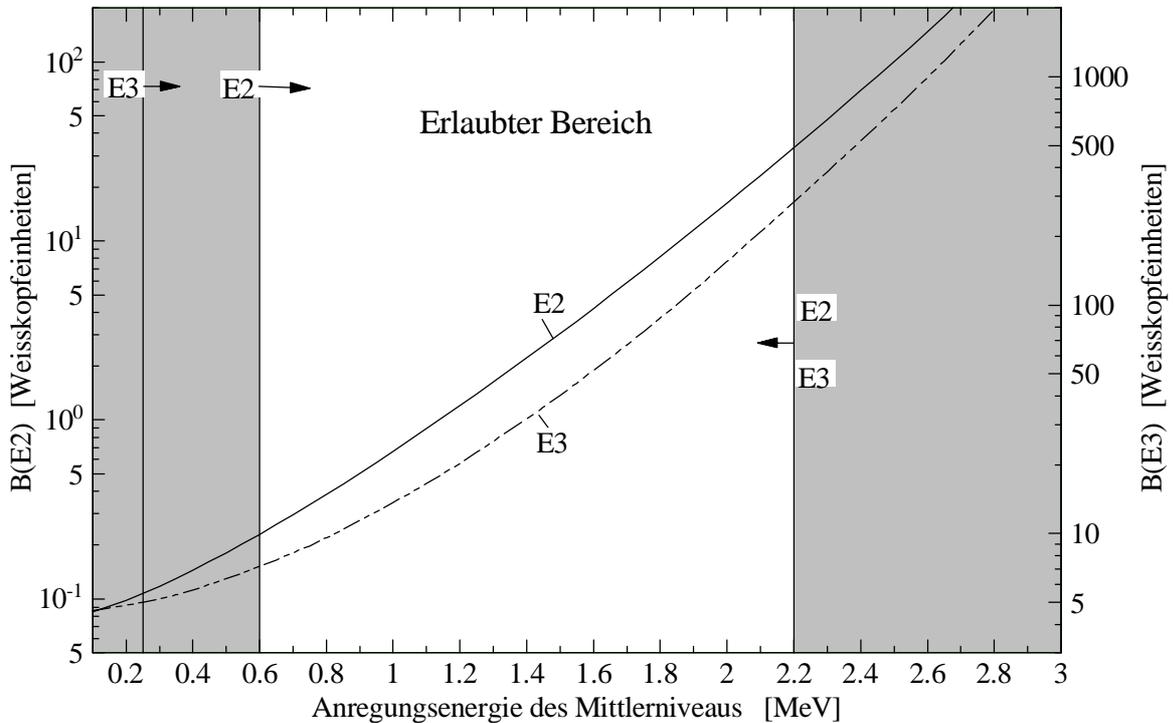
Abb. 3.10 fasst das Gesamtergebnis mit den erlaubten Bereichen für die Anregungsenergie des Mittelzustands und die reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten zusammen. Die schraffierten Bereiche stellen den verbotenen Wertebereich dar, wobei die unteren Grenzen mit 90% Konfidenzlevel analog zu den abgeleiteten Schranken aus der Protonenbestrahlung angegeben ist.

Der Wertebereich für einen E1-Übergang ergibt sich entsprechend, allerdings kann eine E1-Anregung aufgrund von Bremsstrahlungs-Experimenten ausgeschlossen werden (siehe Kap. 3.2.3.4). Wegen der weit geringeren Wirkungsquerschnitte für magnetische und höhere elektrische Anregungen werden solche Übergänge nicht in Betracht gezogen.

<sup>19</sup> Nimmt man andere Multipolaritäten (E1, M1) für den Übergang an, so erhält man dasselbe Ergebnis.



**Abb. 3.9:** Vergleich der E1-, E2-, E3-Ausbeuten für Protonen (3.7 MeV) und  $\alpha$ -Teilchen (15 MeV) in Abhängigkeit von der Lage des Mittlerzustandes.



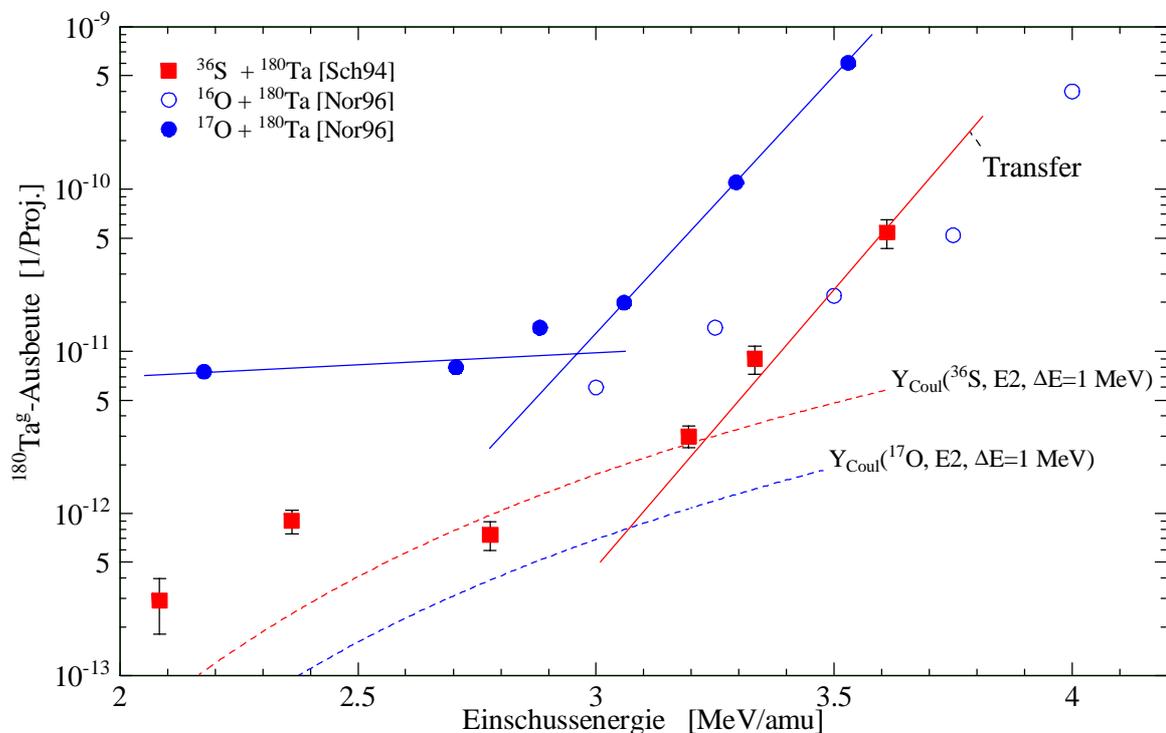
**Abb. 3.10:** Zusammenfassung der erlaubten Anregungsenergien des Mittlerzustandes und der erlaubten reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für E3- und E2-Übergänge (aus der  $\alpha$ -, und Protonenbestrahlung).

Die Werte der reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten in Abb. 3.10 sind aufgrund des unbekanntem Verzweungsverhältnisses des Mittelzustandes (siehe Kap. 4) als untere Grenzen zu betrachten ( $V \leq 1$ ). Für einen hypothetische E3-Übergang ergeben sich daher  $B(E3)$ -Werte, wie sie innerhalb einer Rotationsbande in der Größenordnung starker kollektiver Anregungen vorkommen. Angesichts der großen  $K$ -Differenz zwischen Grundzustand und Isomer sind sie zwar a priori nicht auszuschließen, erscheinen aber eher unrealistisch. Aufgrund der etwas kleineren, aber dennoch recht großen  $B(E2)$ -Werte ist daher eine Quadrupolanregung am wahrscheinlichsten. Es gilt allerdings zu beachten, dass damit nur eine kleine Drehimpulsänderung erreicht und eine  $K$ -Kaskade wahrscheinlich wird, wobei die beteiligten Zustände große Beimischungen besitzen müssen. Dieses Indiz lässt vermuten, dass der Mittelzustand in Abb. 3.10 eher bei höheren Energien liegt. Die astrophysikalischen Konsequenzen dieser starken Kopplung werden in Kap. 4 diskutiert.

### 3.2.3.3 Vergleich zu anderen Coulombanregungs-Experimenten

Analog zum Vergleich der Bestrahlungen mit  $\alpha$ -Teilchen und Protonen sollte man durch Vergleich mit anderen Coulombanregungs-Experimenten zusätzliche Einschränkungen erhalten. Bis dato stehen dafür die erst kürzlich durchgeführten Experimente mit Sauerstoff [Nor96] und Schwefel [Sch94], [Loe96] zur Verfügung.

Abb. 3.11 zeigt die  $^{180}\text{Ta}^g$ -Ausbeute der Bestrahlungen mit Schwefel ( $^{36}\text{S}$ )- [Sch94] und Sauerstoff ( $^{17}\text{O}$ ,  $^{16}\text{O}$ ) [Nor96]. In allen drei Fällen ist ein abknickendes Verhalten der Anregungsfunktion im niederenergetischen Bereich zu erkennen, das für die  $^{17}\text{O}$ -Daten mit den



**Abb. 3.11:**  $^{180}\text{Ta}^g$ -Ausbeuten für  $^{17}\text{O}$ ,  $^{16}\text{O}$ , und  $^{36}\text{S}$ . Die Unsicherheiten der Daten von Norman et al. betragen ca. 15%. Die durchgezogenen Kurven sollen das abknickende Verhalten der Anregungsfunktion verdeutlichen. Im Falle der Schwefel-Daten spiegelt die Kurve den von Schlegel et al. berechneten Verlauf der Transferreaktion am Schwefel wieder. Gestrichelt eingezeichnet sind die Coulombanregungsfunktionen zu einem mit den  $\alpha$ -Bestrahlungen kompatiblen Mittelzustand.

durchgezogenen Linien verdeutlicht wurde. Die durchgezogene Linie bei den Schwefel-Daten repräsentiert die von Schlegel et al. berechneten Ausbeuten der Transferreaktion  $^{181}\text{Ta}(^{36}\text{S}, ^{37}\text{S})^{180}\text{Ta}$ . Aus der signifikanten Abweichung im niederenergetischen Bereich schlossen die Autoren auf eine Coulombanregung zu einem Mittlerzustand unterhalb 1 MeV.

Vergleicht man nun die theoretischen Ausbeuten der verschiedenen Projektile untereinander, so findet man, dass die Schwefel-Ionen für Zustände bis zu 1 MeV eine etwa dreimal größere Anregungswahrscheinlichkeit besitzen als die Sauerstoff-Ionen, die  $\alpha$ -Teilchen dagegen etwa die gleiche wie die Sauerstoff-Ionen<sup>20</sup>. Aus der im Vergleich zu den Sauerstoff-Ionen um mehr als eine Größenordnung differierenden Schwefel- und  $\alpha$ -Ausbeuten kann daher eine Interpretation der niederenergetischen Komponente der Sauerstoff-Daten bezüglich einer Coulombanregung ausgeschlossen werden. Dies ist in Abb. 3.11 durch die große Diskrepanz der Sauerstoff-Daten zur Coulombanregungsfunktion für einen mit den  $\alpha$ -Bestrahlungen verträglichen Mittlerzustand bei 1 MeV verdeutlicht.

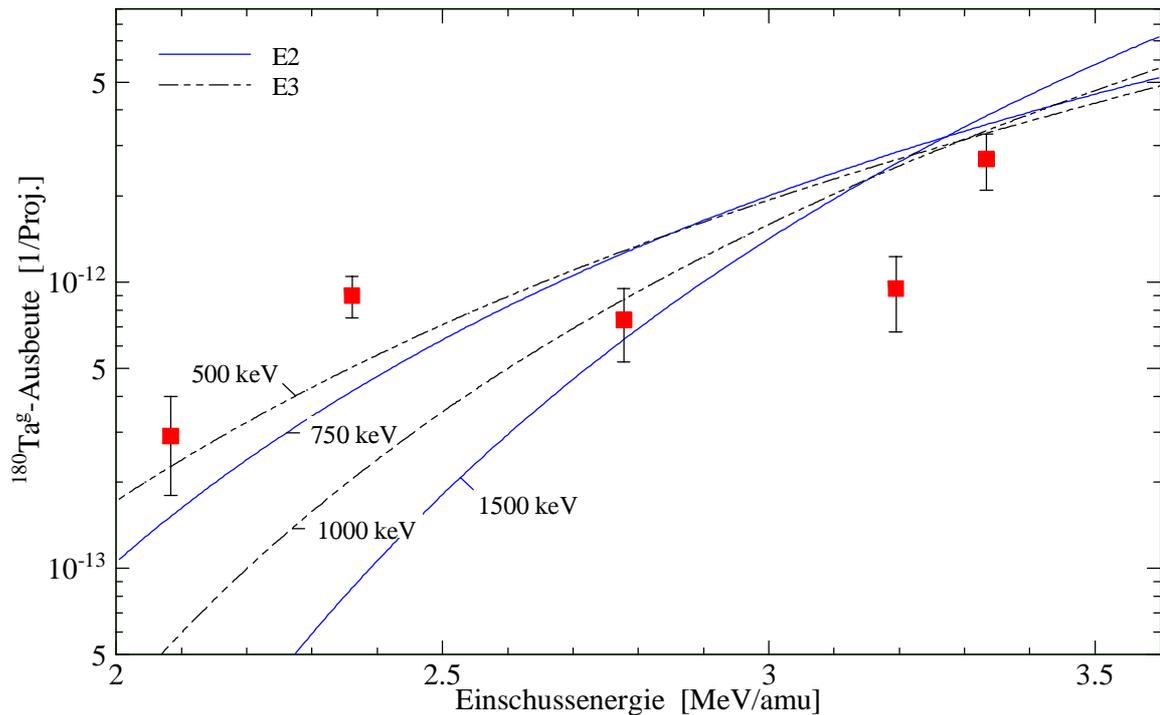
Die Basis der Vergleichsrechnungen sind die aus (3.1) und (3.3) abgeleiteten Ausbeuten, die mit Unsicherheiten von 5 - 6% angegeben werden können. Dabei sind die Fehler fast ausschließlich auf die Unsicherheiten in den Werten des Energieverlustes [Zie80] zurückzuführen und beziehen sich daher auf den Absolutbetrag und weniger auf die Form der Anregungskurven. Korrekturen aufgrund multipler Anregungen sind bei den Energien der verwendeten Projektile zu vernachlässigen (vgl. Kap. 3.1.2). Die Schlussfolgerung ist, dass die gemessenen Signale aus einer Untergrundreaktion stammen. Da die Sauerstoff-Daten ausschließlich auf den Zählraten der Hf-Röntgenlinien beruhen, kann nicht beantwortet werden, ob ein  $^{180}\text{Ta}^g$ -Signal nur vorgetäuscht oder tatsächlich durch eine andere Kernreaktion erzeugt wurde. Hier bestätigt sich die zuvor betonte Notwendigkeit einer Koinzidenzmessung.

In Abb. 3.12 sind die Datenpunkte der niederenergetischen  $^{36}\text{S}$ -Komponente mit den Anregungsfunktionen für die mit den  $\alpha$ -Bestrahlungen verträglichen Mittlerzuständen zwischen 500-1500 keV (vgl. Abb. 3.10) dargestellt. Man erkennt große Streuungen, aber auch eine bessere Anpassung der Daten für niederenergetische Zustände (< 750 keV), was im Hinblick auf die Interpretation der  $\alpha$ -Ausbeuten gerade einen entgegengesetzten Trend widerspiegelt.

Die neuesten Coulombanregungs-Experimente mit Schwefel-Ionen [Loe97] bestätigen das abknickende Verhalten in der Anregungsfunktion von Schlegel et al.. Durch Bestrahlungen mit angereicherten Targets konnte allerdings keine Korrelation zur  $^{180}\text{Ta}$ -Häufigkeit in den Targets festgestellt werden. Deshalb, und im Hinblick auf die Ergebnisse der Sauerstoffbestrahlungen, erscheint es zweifelhaft, ob die Schwefel-Daten in Abb. 3.12 ausschließlich mittels Coulombanregung interpretiert werden können. Vergleiche der Schwefelexperimente untereinander lagen bei Fertigstellung dieser Arbeit noch nicht vor.

Unbeantwortet bleibt die Frage, durch welche Reaktion eine  $^{180}\text{Ta}^g$ -Signatur erzielt oder vorgetäuscht werden kann. Loewe et al. [Loe97] schlossen aufgrund fehlender Korrelationen zur  $^{181}\text{Ta}$ -Häufigkeit auf Reaktionen an den Verunreinigungen im Tantal-Target. Angesichts der Vielzahl an Untergrundreaktionen, die bei den Bestrahlungen mit  $\alpha$ -Teilchen auftraten, erscheint diese Schlussfolgerung durchaus plausibel. Eine Wiederholung dieser Experimente mit anschließender Koinzidenzmessung könnte eine eindeutige Zuordnung zur  $^{180}\text{Ta}^g$ -

<sup>20</sup> Dies gilt unabhängig von der angenommenen Multipolarität des Übergangs. Für Mittlerzustände oberhalb 1 MeV verstärkt sich die Aussage durch die zunehmende Anregungswahrscheinlichkeit der  $\alpha$ -Teilchen gegenüber den Sauerstoff-Ionen.



**Abb. 3.12:** Ausbeuten der niederenergetischen Komponente der Schwefel-Daten und Coulombanregungsfunktionen.

Aktivität liefern und somit ähnlich der Aktivierung mit  $\alpha$ -Teilchen die Zahl der möglichen Untergrundreaktionen einschränken. Bis zu einer Lösung dieses Rätsels sind Schlussfolgerungen in Bezug auf die Anregungsenergie des Mittlerniveaus allein aus den Ergebnissen der Coulombanregung mit den  $\alpha$ -Teilchen abzuleiten.

### 3.2.3.4 Vergleich zu Photoaktivierungs-Experimenten

Experimente, eine Kopplung zwischen Grundzustand und Isomer über direktem Wege durch Bestrahlung mit reellen Photonen nachzuweisen, resultierten in der Entdeckung zweier Mittlerzustände bei 2.8 und 3.6 MeV Anregungsenergie. Aus der Tatsache, dass bei kleineren Energien keine Depopulierung des Isomers beobachtet wurde, leiteten Collins et al. [Col90] eine obere Schranke für den integrierten Wirkungsquerschnitt bei 1.4 MeV Anregungsenergie ( $\sigma\Gamma(1.4 \text{ MeV}) < 5 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2 \text{ keV}$ ) ab. Diese lässt sich über Annahmen der Multipolarität des Übergangs in obere Schranken für die reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten  $B(E\lambda)$  konvertieren. Man erhält  $B(E1) < 0.0008 \text{ W.u.}$ ,  $B(E2) < 11 \text{ W.u.}$  und  $B(E3) < 1.3 \cdot 10^6 \text{ W.u.}$ . Auf die Aktivierungen mit  $\alpha$ -Teilchen bezogen, ergibt sich daraus der Ausschluss eines E1-Übergangs, da die mit den experimentellen Daten verträglichen  $B(E1)$ -Werte um ca. zwei Größenordnungen darüber liegen.

Die Suche nach Mittlerzuständen unterhalb 1.3 MeV mittels starker  $\gamma$ -Strahler ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) verliefen erfolglos [Nor84], [Nem92]. Die angegebenen oberen Schranken der Wirkungsquerschnitte beziehen sich allerdings auf den primären  $\gamma$ -Fluss und sind aufgrund der unbekannt experimentellen Bedingungen schlecht konvertierbar. Eine grobe Abschätzung anhand der sensitiveren Messungen von Nemeth et al. liefert gegenüber den Resultaten von Collins et al. etwa um zwei Größenordnungen größere  $\sigma\Gamma$ -Werte, was in hinsichtlich der Ergebnisse der  $\alpha$ -Bestrahlungen keine weitere Einschränkung bedeutet.

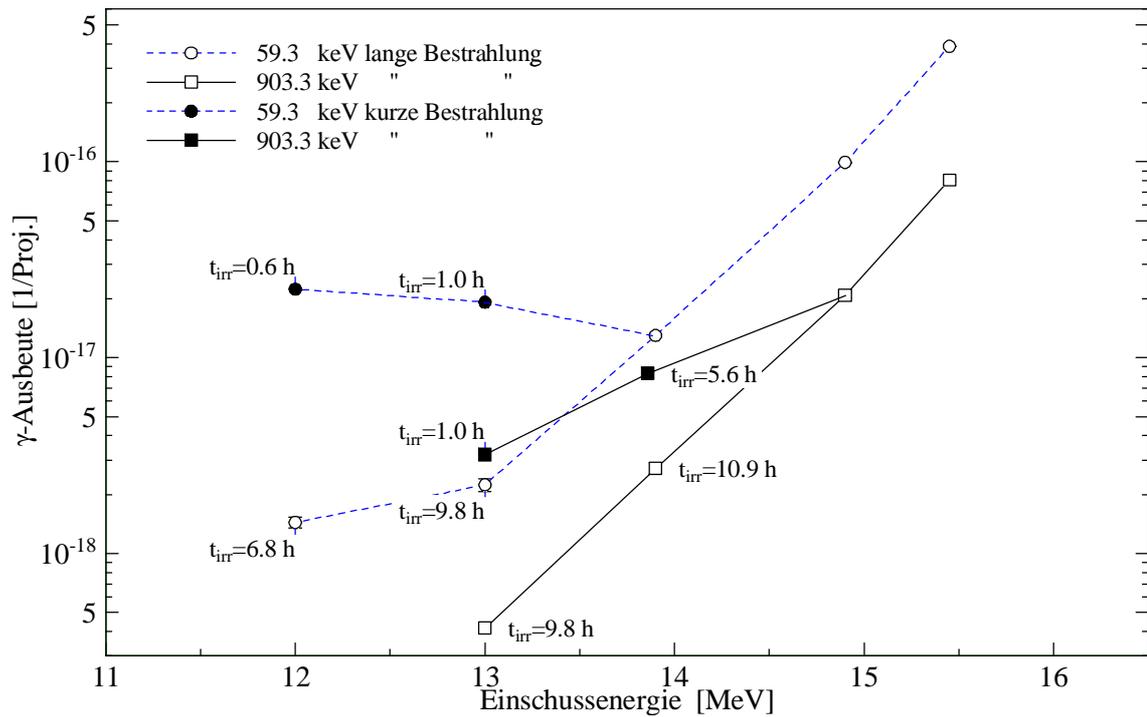
Neuerdings sind Bestrebungen im Gange, mit einem verbesserten Experiment und einem angereicherten Target die Messungen von Collins et al. zu wiederholen und dabei gezielt nach Zuständen unterhalb 1.5 MeV zu suchen [Boe96]. Die angestrebte Steigerung der Sensitivität um einen Faktor 400 sollte ausreichen, weitere Einschränkungen für einen E2-Übergang zu erhalten.

### 3.2.3.5 $^{184}\text{Re}$ -Ausbeuten

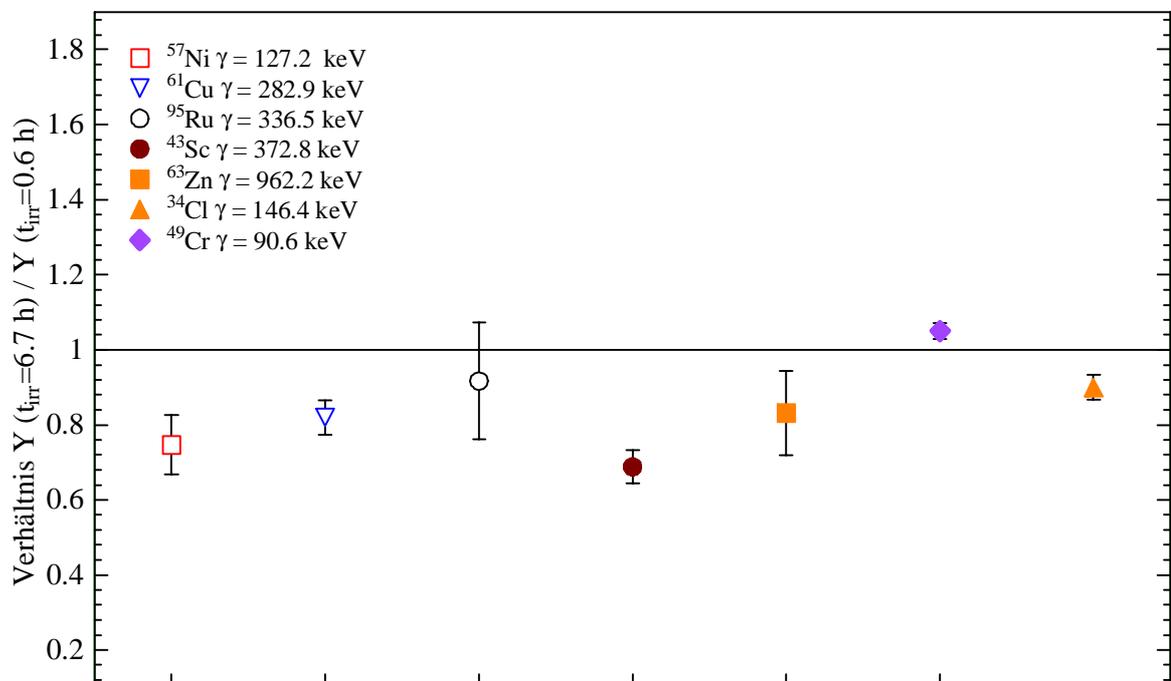
Bei niedrigen Einschussenergien und längeren Bestrahlungsdauern zeigten die Tantal-Targets meist Blasen an der Oberfläche der Folien, die durch die erschwerte Diffusion des implantierten Heliums in der Tantalfolie verursacht wurden. Daher wurde untersucht, inwieweit Zählratenverluste durch Absorption in der Blase oder durch Absputtern von der Oberfläche auftreten können.

Dazu wurden bei gleicher Einschussenergie, aber unterschiedlicher Bestrahlungsdauer, die in den Folien induzierten Aktivitäten verglichen. Hierfür standen Messungen bei  $\alpha$ -Energien von 12, 13 und 13.9 MeV zur Verfügung, wobei die ohne Koinzidenzanforderung aufgenommenen Spektren in Bezug auf die induzierte  $^{184}\text{Re}$ -Aktivität ( $t_{1/2}=38$  d) analysiert wurden.  $^{184}\text{Re}$  zeichnet sich nicht nur durch intensive  $\gamma$ -Linien im Spektrum bis 1 MeV aus, sondern wird auch an der gut bekannten „Verunreinigung“  $^{181}\text{Ta}$  in großem Maße gebildet. Abb. 3.13 zeigt das Ergebnis dieser Analyse. Eingezeichnet sind die Ausbeuten der 59.3 und 903.3 keV  $\gamma$ -Linien aus dem  $^{184}\text{Re}$ -Zerfall in Abhängigkeit von der Einschussenergie und der Bestrahlungsdauer. Für längere Bestrahlungszeiten bleiben die Ausbeuten beider Linien um mehr als eine Größenordnung zurück, wobei die Differenz der Ausbeuten mit der relativen Differenz der Bestrahlungsdauer korreliert ist. Dieses überraschende Ergebnis kann weder mit Absorptionseffekten noch mit Verlusten durch Absputtern erklärt werden, wie die in Abb. 3.14 dargestellte Analyse anderer  $\gamma$ -Aktivitäten zeigt. Hier ist das in guter Näherung konstante Verhältnis der  $\gamma$ -Ausbeuten verschiedener aktivierter Verunreinigungen für die 0.6 h und 6.8 h Bestrahlungen bei 12 MeV dargestellt. Um Variationen in den Häufigkeiten der Targetverunreinigungen auszuschließen, wurde in beiden Bestrahlungen dieselbe Folie verwendet.

Andere Verunreinigungen, die ein  $^{184}\text{Re}$ -Signal vortäuschen könnten, sind auszuschließen, da die Unregelmäßigkeiten von Abb. 3.13 auch in den koinzident aufgenommenen Spektren zu finden sind. Da der einzige Unterschied in der Bestrahlungsdauer liegt, ist zu vermuten, dass es sich bei obigen Signalen um einen Hinweis auf ein weiteres, bisher unbekanntes Isomer im  $^{184}\text{Re}$  handelt. Dessen Halbwertszeit konnte durch Vergleich der  $f_b$ -Faktoren im Bereich von Stunden abgeschätzt werden.



**Abb. 3.13:**  $\gamma$ -Ausbeuten aus dem  $^{184}\text{Re}$ -Zerfall in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdauer. Die Fehlerbalken sind in der Regel kleiner als die Symbole.



**Abb. 3.14:** Vergleich der  $\gamma$ -Ausbeuten verschiedener Verunreinigungen in Hinblick auf die Bestrahlungsdauer.

## Kapitel 4

# Astrophysikalische Implikationen

Die durch die Coulombanregungs-Experimente nachgewiesene Kopplung führt zu einer Abnahme der Besetzungszahl des Isomers, was sich durch eine effektive Halbwertszeit ausdrücken lässt. Unter diesem Gesichtspunkt wird in den folgenden Unterkapiteln die Synthese von  $^{180}\text{Ta}$  sowohl im s-, als auch in alternativen Prozessen diskutiert.

## 4.1 Auswirkungen der Kopplung

Abb. 4.1 zeigt die Kopplung des 3-Niveausystems von Grundzustand, Isomer und Mittlerzustand im elektromagnetischen Strahlungsfeld, wobei die Übergänge durch induzierte Emission aufgrund der hohen Anregungsenergie vernachlässigt sind<sup>21</sup>. Die Absorption und die spontane Emission werden durch die Einsteinkoeffizienten B und A und durch die Planck'sche Strahlungsdichte  $\rho$  beschrieben. Unter Vernachlässigung des Grundzustandzerfalls ergeben sich gekoppelte Differentialgleichungen für die Besetzungszahlen  $n_i$ ,  $n_g$ ,  $n_m$  der einzelnen Zustände:

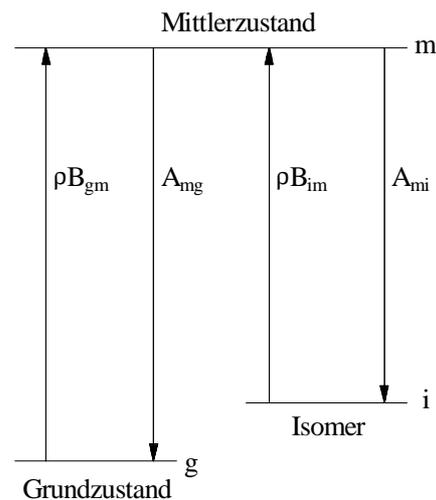


Abb. 4.1: Kopplung von Isomer und Grundzustand im elektromagnetischen Strahlungsfeld.

<sup>21</sup> Die folgenden Ergebnisse gelten auch für Systeme mit kurzlebigen Zwischenzuständen [Kla90], [The95].

$$\frac{dn_g}{dt} = -\rho B_{gm} n_g + A_{mg} n_m \quad (4.1)$$

$$\frac{dn_m}{dt} = \rho B_{gm} n_g + \rho B_{im} n_i - (A_{mg} + A_{mi}) n_m \quad (4.2)$$

$$\frac{dn_i}{dt} = -\rho B_{im} n_i + A_{mi} n_m \quad (4.3)$$

Die Zeitkonstante des Systems für die Annäherung an das thermische Gleichgewicht ( $dn/dt = 0$ ) erhält man durch Lösen dieser Differentialgleichungen [Kla90]:

$$\lambda_0 \approx \frac{V(1-V)}{\tau_m} \cdot g_{mi} \cdot e^{-\frac{E_m-E_i}{kT}}, \quad (4.4)$$

mit dem Verhältnis der statistischen Spinfaktoren  $g_{mi} = 2I_m + 1/2I_i + 1$ , der Lebensdauer des Mittelzustands  $\tau_m = (A_{mi} + A_{mg})^{-1}$  und dessen Verzweungsverhältnis zum Grundzustand  $V = A_{mg}/(A_{mg} + A_{mi})$ .

In die Berechnung der Konstanten  $\lambda_0$  geht die Anregungsenergie des Mittelzustandes entscheidend ein. Bei s-Prozess Temperaturen von  $3 \cdot 10^8$  K und Anregungsenergien zwischen 500 und 1500 keV erhält man für die Annäherung an das thermische Gleichgewicht Zeitspannen von wenigen Sekunden bis hin zu Millionen von Jahren<sup>22</sup>.

Um die effektive Zerfallskonstante des Isomers zu berechnen, müssen in (4.1) und (4.3) die Zerfälle von Grundzustand und Isomer mitberücksichtigt werden. Die erneute Lösung des Differentialgleichungssystems liefert:

$$\lambda_{eff} = \frac{\frac{V(1-V)}{\tau_m} (\lambda_g g_{mi} e^{-\frac{E_m-E_i}{kT}} + \lambda_i g_{mg} e^{-\frac{E_m}{kT}}) + \lambda_g \lambda_i}{\frac{V(1-V)}{\tau_m} (g_{mi} e^{-\frac{E_m-E_i}{kT}} + g_{mg} e^{-\frac{E_m}{kT}}) + \lambda_g}. \quad (4.5)$$

Man erkennt das asymptotische Verhalten von (4.5): Zum einen gehen für kleine Temperaturen die Terme mit den Exponentialfunktionen gegen Null und  $\lambda_{eff} \rightarrow \lambda_i$ , andererseits können für große Temperaturen die Terme mit  $\lambda_i$  vernachlässigt werden und  $\lambda_{eff} \approx \lambda_g$ . Ferner gilt für schwache Kopplungen ( $V \ll 1$ ):  $\lambda_{eff} \rightarrow \lambda_i$ .

Die Zerfallsrate des Grundzustandes hängt aufgrund der Ionisation im stellaren Medium auch von der Temperatur ab. So führen  $\beta^-$ -Zerfälle in nicht besetzte atomare Zustände zu einer Beschleunigung, wohingegen EC-Zerfälle durch die leeren Orbitale eine Verzögerung erfahren. Aufgrund des dominanten EC-Zerfalls ergibt sich insgesamt eine Retardierung, die

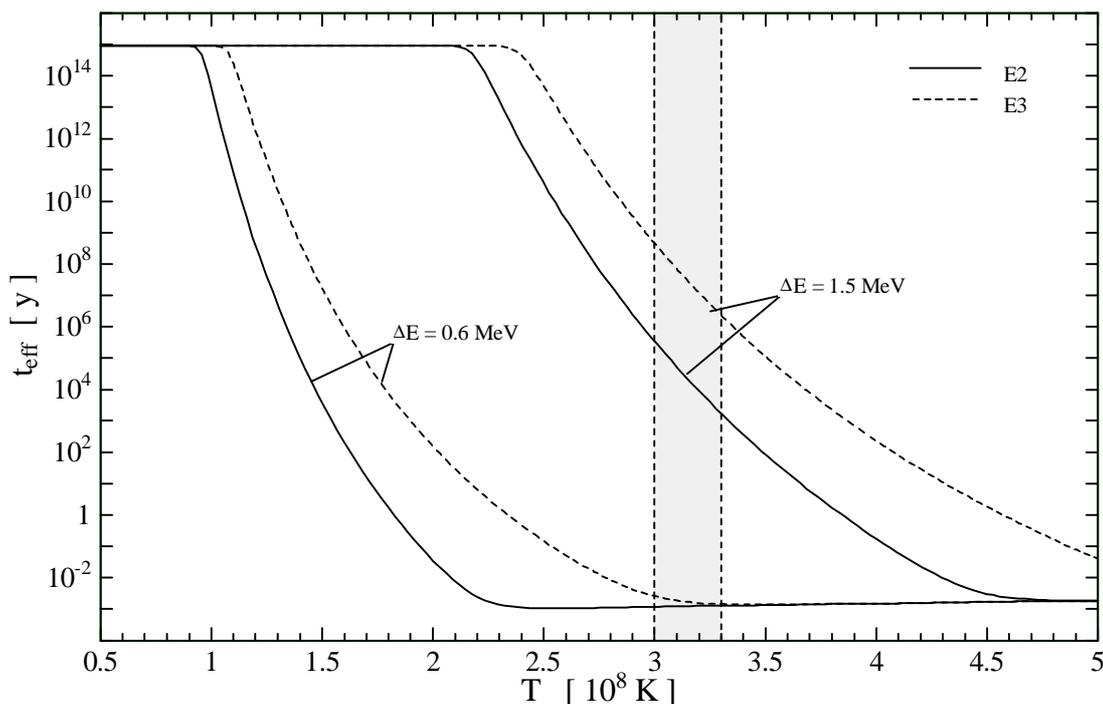
<sup>22</sup> In der Literatur findet man auch Rechnungen unter der vereinfachten Annahme eines thermische Gleichgewichts. Die Vernachlässigung der Zeitdauer für das Einstellen des thermischen Gleichgewichts führt daher besonders für Zustände höherer Anregungsenergie zu niedrigeren effektiven Halbwertszeiten.

aber gemessen an der Temperaturabhängigkeit von (4.5) vergleichbar gering (Faktor 5) ausfällt und daher vernachlässigt wurde.

Was bedeuten nun die Ergebnisse der Coulombanregungs-Experimente? Die Übergangsrate der spontanen Emission ergibt sich aus den reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten  $B(E\lambda)$ :

$$A_{mi} = \frac{8\pi(\lambda+1)}{\lambda[(2\lambda+1)!!]^2} \cdot \frac{1}{\hbar} \left( \frac{E_m - E_i}{\hbar c} \right)^{2\lambda+1} \cdot B(E\lambda).$$

In Abb. 4.2 ist die effektive Halbwertszeit für die aus Abb. 3.10 erlaubte E2- und E3-Übergängen zu Mittelzuständen bei 0.6 MeV und 1.5 MeV gegenüber der Temperatur aufgetragen. Der schraffierte Bereich gibt das Temperaturfenster für eine signifikante s-Produktion von  $^{180}\text{Ta}$  und eine noch tolerierbare Produktion von  $^{180}\text{W}$  wieder. Unterhalb  $3 \cdot 10^8 \text{ K}$  wird die Verzweigung in  $^{179}\text{Hf}$  ineffektiv, während oberhalb  $3.3 \cdot 10^8 \text{ K}$  der s-Anteil an  $^{180}\text{W}$  die 30% Marke übersteigt. Man erkennt deutlich die Sensitivität der Halbwertszeit gegenüber der Temperatur durch den Abfall von 18 Größenordnungen in einem sehr kleinen Temperaturbereich. Die langsameren E3-Übergänge retardieren zwar die Kopplung, entscheidender Parameter ist jedoch die Anregungsenergie. Ist die effektive Halbwertszeit des Isomers für einen Mittelzustand bei 0.6 MeV noch vollständig durch den Zerfall des Grundzustandes bestimmt, so resultieren Halbwertszeiten zwischen  $10^3$  und  $10^9 \text{ y}$  für einen Mittelzustand bei 1.5 MeV (beste Anpassung der Coulombanregungsdaten), so dass eine nähere Betrachtung der Dynamik der s-Prozess-Synthese erforderlich ist.



**Abb. 4.2:** Effektive Halbwertszeit von  $^{180}\text{Ta}^m$  für verschiedene zu den Coulombanregungs-Experimenten verträgliche Mittelzustände.

## 4.2 Synthese im s-Prozess

### 4.2.1 Klassischer s-Prozess

Unter dem klassischen s-Prozess versteht man die rein phänomenologische Betrachtung des Syntheseprozesses basierend auf den beobachteten Häufigkeiten und den gemessenen Neutroneneinfangquerschnitten. Damit sind die Ergebnisse unabhängig von den stellaren Modellen, die aufgrund ihrer Komplexität beträchtliche Unsicherheiten zeigen können.

Die im Syntheseprozess gebildeten stabilen Isotopenhäufigkeiten ergeben sich aus der Produktion und Destruktion durch Neutroneneinfang:

$$\frac{dN_s(A)}{dt} = \lambda_n(A-1)N_s(A-1) - \lambda_n(A)N_s(A), \quad (4.6)$$

wobei die Neutroneneinfangrate durch das Produkt von Einfangquerschnitt und Neutronenfluss gegeben ist:  $\lambda_n = \sigma \Phi_n$ . Unter der vereinfachten Annahme einer konstanten Temperatur und Neutronendichte findet man als Gleichgewichtslösung obiger gekoppelter Differentialgleichung  $\sigma N_s(A) = \text{const.}$  Tatsächlich zeigt sich, dass dies zwischen den magischen Zahlen auch annähernd erfüllt ist — man spricht daher auch von der lokalen Näherung —, darüber hinaus aber eine Überlagerung mehrerer Neutronenbestrahlungen benötigt wird, um den Verlauf der  $\sigma N_s(A)$ -Kurve wiederzugeben. Eine gute Anpassung der Daten für den Großteil aller schweren Elemente mit  $90 < A < 204$  — daher *Hauptkomponente* genannt — findet sich durch eine exponentielle Verteilung mit mittlerer Neutronenbestrahlung  $\tau_0 = 0.306 \pm 0.01 \text{ mb}^{-1}$  ( $kT = 30 \text{ keV}$ ). Um die erhöhten Häufigkeiten der leichten Elemente mit  $A < 90$  und der Blei-Isotope zu reproduzieren, sind zwei weitere Komponenten notwendig, die gemäß ihres zeitintegrierten mittleren Neutronenflusses *schwache* ( $A < 90$ ) und *starke Komponente* ( $A > 204$ ) genannt werden.

In der bisherigen Betrachtung sind Verzweigungen im s-Prozess-Pfad noch nicht berücksichtigt. Diese treten auf, wenn die  $\beta^-$ -Zerfallsrate eines im s-Prozess synthetisierten instabilen Isotops mit der Neutroneneinfangrate ( $\lambda_\beta \approx \lambda_n$ ) vergleichbar wird. Anhand der  $\sigma N_s$ -Systematik lässt sich das Verzweigungsverhältnis  $f_n = \lambda_n / (\lambda_n + \lambda_\beta)$  bestimmen, das über die  $\beta^-$ -Zerfallsrate auch von der Temperatur abhängen kann (Ionisationsgrad der Atome, Zerfall thermisch angeregter Zustände). Aus der Analyse dieser „Thermometer“ wurde die Temperatur für den s-Prozess zu  $T_s = 3.3 \pm 0.5 \cdot 10^8 \text{ K}$  bestimmt. In Analogie dazu lassen sich die Neutronen- und Materiedichte ermitteln [Köp89].

Diese abgeleiteten Parameter stellen über die Dynamik des tatsächlichen Prozesses gemittelte Werte dar. Sternmodellrechnungen versuchen nun, diese Mittelwerte in einem zeitabhängigen Szenario wiederzugeben, wobei in Hinblick auf die Synthese von  $^{180}\text{Ta}$  besonders die Prozessdauer und die Temperaturprofile der stellaren Umgebung von Bedeutung sind.

## 4.2.2 Stellare Modelle

Nicht zuletzt aufgrund von beobachteten Anreicherungen von s-Kernen in Roten Riesen wurde der s-Prozess mit dem He-Brennen assoziiert. Als Neutronenquellen stehen hierfür die  $^{13}\text{C}(\alpha,n)^{16}\text{O}$  und  $^{22}\text{Ne}(\alpha,n)^{25}\text{Mg}$  Reaktionen zur Verfügung.

Für die Hauptkomponente ergeben sich die aus dem klassischen s-Prozess abgeleiteten physikalischen Bedingungen in AGB-Sternen mit 1-3 Sonnenmassen. Als AGB-Sterne bezeichnet man Rote Riesen, die nach dem Erlöschen des He-Brennens im Sterninneren infolge einer thermischen Instabilität ein alternierendes H- und He-Brennen zeigen. Ferner zeichnen sich die Sterne in dieser Phase durch einen erheblichen Massenverlust aus, so dass für die frisch synthetisierten s-Kerne ein effizienter Transportmechanismus ins interstellare Medium zur Verfügung steht.

Neuesten Sternmodellrechnungen zufolge erfolgt die Nukleosynthese in einer dünnen He-Schale [Gal97]. In dieser Schale verläuft das He-Brennen pulsierend für eine kurze Zeitspanne von ca. 200-300 Jahren, gefolgt von Interpulsphasen von ca. 50 000 Jahren. Am Ende jeder He-Brennphase werden Protonen aus der konvektiven Hülle in die  $^{12}\text{C}$ -reiche He-Schale gemischt und dort zu  $^{13}\text{C}$  synthetisiert. Der s-Prozess findet sodann durch die dominante  $^{13}\text{C}(\alpha,n)$ -Quelle in einer radiativen Umgebung bei Temperaturen von  $0.9 \cdot 10^8$  K statt. Im Anschluss daran erfolgt während der nächsten He-Brennphase für wenige Jahre eine zweite Neutronenbestrahlung durch die  $^{22}\text{Ne}(\alpha,n)$ -Quelle bei Temperaturen von  $2.5 - 3.1 \cdot 10^8$  K.

In diesem Modell überschreiten die Temperaturen nur unwesentlich  $3 \cdot 10^8$  K, so dass durch die schwache Verzweigung im  $^{179}\text{Hf}$  nur eine relativ geringe  $^{180}\text{Ta}$ -Häufigkeit (ca. 25% des solaren Wertes) entstehen kann. Zusammen mit der Verzweigung im  $^{180}\text{Hf}$ , die in etwa den gleichen Prozentsatz liefert, kann damit die Hälfte der solaren Häufigkeit von  $^{180}\text{Ta}$  erklärt werden. Aufgrund der kurzen Zeitspanne in der diese Temperaturen auftreten, hat ein Mittlerzustand oberhalb 1 MeV allerdings einen vernachlässigbaren Einfluss auf die produzierte  $^{180}\text{Ta}$ -Häufigkeit. Die Rechnungen von Gallino et al. basieren dabei auf einem Stern mit solarer Metallizität. Sterne mit geringeren Metallizitäten zeigen andere Temperaturprofile und Neutronenflüsse und können durchaus größere Produktionsfaktoren ermöglichen.

Der wahrscheinlichste stellare Ort für die schwache Komponente ist das He-Brennen im Zentrum massiver Sterne ( $M > 25$  Sonnenmassen), sowie das C-Schalen-Brennen in einem späteren Stadium dieser Sterne [Rai91a], [Rai91b]. Bei beiden Brennphasen sind die Temperaturen ausreichend um die  $^{22}\text{Ne}(\alpha,n)$ -Quelle signifikant zu betreiben. Das He-Kern-Brennen verläuft bei  $T \approx 3.5 \cdot 10^8$  K für ca. 1.6 Mio. Jahre, das C-Brennen dauert vergleichsweise kurz (0.7 Jahre), dafür aber bei  $T \approx 1 \cdot 10^9$  K.

Eine nennenswerte Produktion von  $^{180}\text{Ta}$  wird in diesem Modell ausschließlich im C-Brennen erzeugt, so dass schon der bekannte Mittlerzustand bei 2.8 MeV eine effiziente Kopplung einleitet.

Im Zusammenhang mit der schwachen Komponente untersuchten Arcoragi et al. [Arc91] auch das C-Kern- und He-Schalen-Brennen in massiven Sternen mit 15 und 30 Sonnenmassen. Sie konnten zwar keine signifikante Nukleosynthese für Elemente mit  $A < 90$  verzeichnen, fanden aber eine Überproduktion von  $^{180}\text{Ta}$  in den heißen C-Brennzonen ( $T > 7 \cdot 10^8$  K). Analog zur obigen Diskussion kann auch hier die Synthese ausgeschlossen werden.

## 4.3 Alternative Syntheseprozesse

Sollte eine s-Prozess-Synthese aufgrund eines niederenergetischen Mittlerzustandes oder unzureichender Produktion auszuschließen sein, so stellen die im Folgenden aufgeführten Syntheseprozesse eine Alternative dar. Anzumerken ist aber, dass diese Prozesse mit großen Unsicherheiten behaftet sind und bei heutigem Kenntnisstand nur teilweise wirkliche Alternativen repräsentieren.

### 4.3.1 r-Prozess

Durch die  $\beta^-$ -Zerfallskette nach dem eigentlichen r-Prozess wird auch das 5.5 h Isomer in  $^{180}\text{Hf}$  bevölkert, so dass analog zum s-Prozess ebenfalls die Möglichkeit der Synthese über den direkten Isomer zu Isomer Zerfall besteht. Kellogg et al. [Kel86] konnten eine obere Grenze von  $f < 0.026\%$  für die Fütterung des Isomers im r-Prozess bestimmen, woraus sich eine vernachlässigbare  $^{180}\text{Ta}$ -Häufigkeit in der Größenordnung von wenigen Prozent ableiten lässt. Es bleibt jedoch anzumerken, dass die Ergebnisse von Eschner et al. [Esc84] ( $f = 0.46 \pm 0.15$ ) dazu im Widerspruch stehen und zu einer signifikanten r-Synthese führen würden. Eine Erklärung der Diskrepanz ist durch die Existenz eines theoretisch möglichen Hochspin-Isomers in  $^{180}\text{Lu}$  gegeben, für dessen Nachweis beide Experimente eine unterschiedliche Sensitivität gezeigt hätten. Eine experimentelle Bestätigung des Hochspin-Isomers durch den Zerfall von  $^{180}\text{Yb}$  war allerdings erfolglos [Run87].

Da es sich beim r-Prozess um einen explosiven Mechanismus handelt, ist die Zeitdauer für das Absinken der Temperaturen kleiner als die Dauer der  $\beta^-$ -Zerfallskette. Die eigentliche  $^{180}\text{Ta}$ -Synthese läuft daher bei weitaus geringeren Temperaturen ab und die Kopplung von Grundzustand und Isomer wird ineffektiv.

### 4.3.2 p-Prozess

Die Synthese im p-Prozess wird durch eine Überlagerung von Photodisintegration und Protoneneinfang an s- und r- Saatkernen beschrieben, wobei in heißen ( $T = 2 - 3 \cdot 10^9$  K) stellaren Brennzonen die schweren p-Kerne über  $(\gamma, n)$ , die leichten p-Kerne über  $(p, \gamma)$  in Regionen hoher Dichte synthetisiert werden. Vor allem die Unterproduktion leichter p-Kerne in einzelnen astrophysikalischen Szenarien deutet darauf hin, dass der p-Prozess eine Superposition mehrerer Ereignisse darstellt, die durch eine kurze Zeitskala charakterisiert sind.

Eine effektive Kopplung zwischen Grundzustand und Isomer im  $^{180}\text{Ta}$  wird bei den hohen p-Prozess-Temperaturen schon durch den Mittlerzustand bei 2.8 MeV erreicht. Allerdings erlaubt die kurze Zeitskala lediglich eine Umverteilung der Besetzungszahlen, aber keine komplette Depopulation.

Prantzos et al. [Pra90] konnten in einem realistischen Modell der Supernova 1987A erstmalig eine mit anderen p-Kernen vergleichbare Produktion von  $^{180}\text{Ta}$  errechnen. Abgesehen von den Unsicherheiten, die einem solchen explosiven Szenario zugrunde liegen, sind die Überproduktionsfaktoren gemessen am p-Prozess in Supernovae Typ Ia [How91] zu gering, um die Masse an p-Kernen zu synthetisieren. Eine Abschätzung der Häufigkeiten der verschiedenen Supernova-Typen führt zu  $N_p(^{180}\text{Ta}) < 10\%$ .

### 4.3.3 Spallation im interstellaren Medium

Analog zum Synthesemechanismus der mit geringer Häufigkeit auftretenden leichten Elemente Li, Be und B ergibt sich die Möglichkeit der Produktion der seltenen stabilen uu-Kerne durch Spallationsreaktionen im interstellaren Medium [Hai76]. Hainebach et al. konnten unter Berücksichtigung des für die Isotopenhäufigkeiten von  $^7\text{Li}$  und  $^{11}\text{B}$  geforderten erhöhten niederenergetischen ( $E < 30$  MeV) Teilchenflusses zeigen, dass  $^{180}\text{Ta}$  durch Reaktionen der kosmischen Protonen und  $\alpha$ -Teilchen an den Kernen aus dem interstellaren Medium — und umgekehrt — in Größenordnung der solaren Häufigkeit produziert werden kann.

Da es sich hierbei um einen kalten Syntheseprozess handelt, hat die Kopplung von Isomer und Grundzustand natürlich keinen Einfluss.

Die Existenz einer niederenergetischen Komponente in der kosmischen Strahlung ist bis heute ungeklärt. Hinzu kommt, dass neben den Unsicherheiten in den Produktionsquerschnitten und in der angenommenen Häufigkeitsverteilung der kosmischen Strahlung vor allem das unbekanntes zum Isomer führende Verzweigungsverhältnis im  $^{180}\text{Ta}$  nur ungenaue quantitative Schlüsse ( $< 1\% - 100\%$ ) über die  $^{180}\text{Ta}$ -Häufigkeit zulässt.

### 4.3.4 $\nu$ -Prozess

Unter dem  $\nu$ -Prozess versteht man die durch Neutrinos induzierten Syntheseprozesse in den massereichen Schalen eines kollabierenden Sterns. Aufgrund der großen  $\nu$ -Luminosität können die kleinen Wirkungsquerschnitte der Neutrinos kompensiert werden, wodurch mittels Spallationsreaktionen an den Nukliden in den äußeren Schalen der Presupernova eine Nukleosynthese induziert wird.

Woosley et al. [Woo90] konnten die Synthese in einem Modell einer Supernova Typ II mit 20 Sonnenmassen quantifizieren. Das Ergebnis war u. a., dass mittels  $^{181}\text{Ta}(\nu, \nu' n)^{180}\text{Ta}$  eine signifikante Überproduktion von  $^{180}\text{Ta}$  in der Neon-Schale des Presupernovasterns erreicht werden kann, die gemessen an anderen Reaktionsprodukten ausreicht, um  $^{180}\text{Ta}$  in solarer Häufigkeit zu produzieren. Inwieweit diese Rechnungen einen Mittelwert für die Nukleosynthese in Sternen anderer Masse darstellen ist noch unbeantwortet, doch zeigen sie eine nicht unbedeutende Möglichkeit der Synthese auf.

Die Synthesetemperaturen in der Neon-Schale betragen in diesem Modell  $1 - 1.7 \cdot 10^9$  K. Jedoch erlaubt die kurze Zeitdauer des Prozesses analog zur Synthese im p-Prozess wiederum keine Destruktion.

Weitere Syntheseprodukte des  $\nu$ -Prozesses sind die leichten Isotope  ${}^7\text{Li}$  und  ${}^{11}\text{B}$ , die in solarer Häufigkeit produziert werden können. Dadurch wird die Existenz einer niederenergetischen Komponente in der kosmischen Strahlung und somit auch eine  ${}^{180}\text{Ta}$  Produktion im interstellaren Medium in Frage gestellt.

### 4.3.5 Photodisintegration bei niedrigeren Temperaturen

Eine sehr spekulative Möglichkeit der Synthese basiert auf  $(\gamma, n)$ -Reaktionen der beim hydrostatischen H-Brennen freigesetzten hochenergetischen Photonen aus den Reaktionen  ${}^7\text{Li}(p, \gamma){}^8\text{Be}$  und  ${}^{13}\text{C}(p, \gamma){}^{14}\text{N}$ . Eine Rechnung von Harrison [Har76] zeigt zwar eine Überproduktion an  ${}^{180}\text{Ta}$  um ein bis zwei Größenordnungen, jedoch waren Verlustmechanismen (Verzweungsverhältnisse im  ${}^{180}\text{Ta}$ ,  ${}^{180}\text{Ta}(\gamma, n)$ ) aufgrund fehlender kernphysikalischen Daten nicht berücksichtigt. Weiterhin kann zwar bei Temperaturen von  $25 \cdot 10^6$  K eine Kopplung von Grundzustand und Isomer vernachlässigt werden, doch ist ungeklärt, wie viele  ${}^{180}\text{Ta}$ -Kerne die folgenden heißeren Brennphasen durchlaufen. Abgesehen von den Unsicherheiten in der kernphysikalischen Datenbasis bleibt die Frage offen, welcher Bruchteil der produzierten Kerne ins interstellare Medium weitergegeben werden kann.

## Kapitel 5

# Schlussbemerkungen

Im Hinblick auf den Synthesemechanismus lieferten die Messungen am  $^{179}\text{Ta}$  mit dem thermischen Neutroneneinfangquerschnitt  $\sigma_{\text{th}}(^{179}\text{Ta} \rightarrow ^{180}\text{Ta}^{\text{g}})$  und mit dem Hinweis auf ein weiteres Isomer im  $^{180}\text{Ta}$  zwei wichtige Ergebnisse.

Die Existenz eines weiteren Isomers hätte erhebliche Konsequenzen für die Synthesemechanismen, da durch dessen Population das Verzweigungsverhältnis  $B = \sigma_{\text{m}} / (\sigma_{\text{m}} + \sigma_{\text{g}})$  zwischen Grundzustand und stabilem Isomer beeinflusst wird (vgl. Abb. 1.2). Aufgrund der unbekanntesten Zerfallskanäle des Isomers kann dadurch die Population des stabilen Zustands um Größenordnungen verändert werden, so dass beispielsweise im s-Prozess durchaus mehr Einfänge am  $^{179}\text{Ta}$  zum langlebigen Isomer führen können.

Das nur unzureichend bekannte Niveauschema von  $^{180}\text{Ta}$  lässt die Möglichkeit eines weiteren Isomers durchaus zu, was angesichts der großen Spindifferenz von Grundzustand und Isomer auch plausibel erscheint. Die über die thermische Aktivierung erstmals erzeugte gezielte Population von Zuständen mit mittlerem Spin würde auch erklären, warum ein solches Isomer bisher noch nicht gefunden wurde.<sup>23</sup>

Die große Unsicherheit in  $B$  sollte aber durch die Messung des thermischen Querschnitts reduziert werden können, denn in erster Näherung unterscheiden sich das stellare und das thermische Verzweigungsverhältnis nur gering. Der totale thermische Einfangquerschnitt kann unter Vernachlässigung der Anteile von Resonanzen mit relativ hoher Genauigkeit berechnet werden, so dass sich aus dem Vergleich mit dem gemessenen, zum Grundzustand führenden, thermischen Einfangquerschnitts von  $^{179}\text{Ta}$  Einschränkungen für  $B$  ergeben.<sup>24</sup>

Für den stellaren Querschnitt ergab sich eine obere Schranke zu  $\sigma_{\text{n},\gamma}(^{179}\text{Ta} \rightarrow ^{180}\text{Ta}^{\text{g}}) < 4.1$  b (68% c.l.), knapp oberhalb des von Holmes et al. berechneten Wertes (3280 mb). Mit der hergestellten Probe konnte jedoch die entwickelte Messmethode getestet werden, so dass zukünftige Messungen mit größeren Probenmassen Erfolg versprechen.

---

<sup>23</sup> Bei der Fertigstellung dieser Arbeit wurde von Drissi et al. [Dri97] bekannt, dass ihre kernspektroskopischen Untersuchungen an  $^{180}\text{Ta}$  Vermutungen über weitere Isomere unterstützen. Weiterführende Experimente dazu sind geplant.

<sup>24</sup> Rechnungen für den totalen thermischen Querschnitt lagen bei Fertigstellung der Arbeit noch nicht vor.

Mit einer erneuten  $^{179}\text{Ta}$ -Probe ließen sich auch die Hinweise auf ein weiteres Isomer im  $^{180}\text{Ta}$  durch Wiederholung der thermische Aktivierung bestätigen. Aufgrund der gesammelten Erfahrungen in der Probenherstellung, insbesondere durch die Ausarbeitung des chemischen Trennverfahrens, sind hier in naher Zukunft sicherlich Ergebnisse zu erwarten.

Die Bestrahlung mit  $\alpha$ -Teilchen ergab neben der Existenz eines Mittlerzustands überraschend auch Anzeichen für ein kurzlebige Isomer im  $^{184}\text{Re}$ . Da Untersuchungen diesbezüglich einen relativ geringen Aufwand bedeuten, sind Folgeexperimente ebenfalls wünschenswert.

Die beste Anpassung an die Daten aus der Coulombanregung mit  $\alpha$ -Teilchen erhält man für E2- und E3-Übergänge zu einem Mittlerzustand bei 1.5 MeV, womit wegen des kleinen Drehimpulsübertrags eine K-Kaskade wahrscheinlich wird. Die großen B(E2)-, B(E3)-Stärken implizieren beträchtliche K-Mischungen der beteiligten Zustände, was bei den niedrigen Energien zwar überraschend, aber nicht auszuschließen ist. Ein Hinweis für starkes K-Mischen im  $^{180}\text{Ta}$  ist durch die Mittlerzustände bei 2.8 MeV und 3.6 MeV gegeben, die um eine Größenordnung größere integrierte Photoabsorptions-Querschnitte aufweisen als bislang bekannte Mittlerniveaus.

Unabhängig von der Existenz eines weiteren Isomers resultiert aus den beobachteten beträchtlichen Beimischungen ebenfalls eine Unsicherheit für das Verzweigungsverhältnis  $B$ . Denn verläuft die  $\gamma$ -Kaskade aus dem Neutroneneinfang über diese gemischten Zustände, so hängt die Population des stabilen Isomers wiederum von den unbekanntem Zerfallskanälen dieser Zustände ab. Auch hier zeigt sich die Notwendigkeit der Messung des stellaren Einfangquerschnitts.

Die Frage, ob in der Hauptkomponente des s-Prozesses synthetisierte  $^{180}\text{Ta}$ -Kerne in der stellaren Umgebung sofort wieder zerstört werden, kann nur unzureichend beantwortet werden. Zwar folgt aus einem Mittlerniveau bei 1.5 MeV eine vernachlässigbare Kopplung von Grundzustand und Isomer, doch ist die Lage des Mittlerzustands, die sich aus der Form der Coulombanregungsfunktion ergibt, sehr ungenau. Diese Ungenauigkeit ist auf die große Untergrundzählrate zurückzuführen, wodurch die erhaltenen Signale auf einen kleinen Bereich der Einschussenergie [12-15.5 MeV] beschränkt waren. Eine Verbesserung dieser Umstände ist nur durch Verwendung angereicherter Proben möglich. Jedoch haben angereicherte Proben bislang den Nachteil extrem hoher Anschaffungskosten<sup>25</sup> und sind ferner nur als Oxid erhältlich, so dass aufgrund der schlechten Wärmeleitung nur geringe Teilchenströme möglich sind. Zudem sind die verfügbaren Probenmassen so klein, dass insgesamt kaum Fortschritte erzielt werden können. Begibt man sich indes auf „Schatzsuche“, so könnten sich vielversprechende Alternativen in Laboratorien mit Elektronen-Linear-Beschleunigern finden. Gemeint sind die zur Neutronenproduktion über  $(\gamma, n)$ - und  $(\gamma, 2n)$ -üblichen metallischen Tantal-Targets, die über ihre Betriebsdauer hinweg erhebliche Anreicherungen in  $^{180}\text{Ta}$  aufweisen.

Die erst vor kurzem durchgeführten Versuche einen Mittlerzustand spektroskopisch über Reaktionen am Hafnium ( $^{180}\text{Hf}(p, n\gamma)$  [Nor96] und  $^{180}\text{Hf}(d, 2n\gamma)$  [Dri97]) oder durch Coulombanregung ( $^{180}\text{Ta}(^{56}\text{Ni}, ^{56}\text{Ni}'\gamma)$  [Loe96] und  $^{208}\text{Pb}(^{180}\text{Ta}, ^{180}\text{Ta}'\gamma)$  [Neu96]) nachzuweisen, blieben bisher erfolglos. Hingegen zeigen die mit Protonen und  $\alpha$ -Teilchen durchgeführten Coulombanregungs-Experimente, dass mit relativ kleinem technischen Aufwand wertvolle Ergebnisse erzielt werden können. Der Vorteil der Coulombanregung mit leichten Projektilen gegenüber den Schwerionen-Experimenten liegt eindeutig in der begrenzten Zahl an Untergrundreaktionen, womit die Gefahr einer Fehlinterpretation der

<sup>25</sup> Eine auf 5% angereicherte Probe ist in Oak Ridge für 16.000\$/mg erhältlich.

Daten reduziert wird. So erschweren die in Schwerionen-Experimenten [Sch94], [Loe97], [Nor96] beobachteten Diskrepanzen, eine zuverlässige Interpretation der Daten. Bis zu einer Klärung dieser Diskrepanzen liefern die Ergebnisse aus der Bestrahlung mit  $\alpha$ -Teilchen den sichersten Hinweis auf einen Mittlerzustand unterhalb von 2.2 MeV.

Es bleibt zu hoffen, dass das steigende Interesse an  $^{180}\text{Ta}$  zu einem verbesserten Verständnis des Niveauschemas führen wird, und somit die Frage nach einer Beteiligung des s-Prozesses an der Synthese von  $^{180}\text{Ta}$  beantwortet werden kann.

## Anhang

# Semiklassische Theorie der Coulombanregung

Die Ableitung des Wirkungsquerschnitts für elektrische Anregung des Targetkerns mittels semiklassischer Beschreibung (vgl. Kap. 3.1) soll hier ausführlicher dargestellt werden. Die Voraussetzungen für die Anwendbarkeit der semiklassischen Theorie, d.h.  $\eta \gg 1$  (klassische Teilchenbahn) und  $\chi^{\lambda} < 0.4$  (kleine Störung) sollen dabei erfüllt sein.

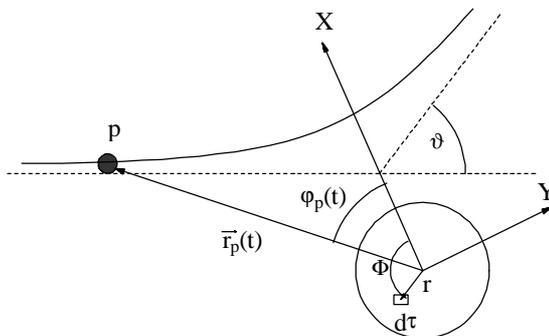


Abb. A.1 zeigt die Flugbahn des Projektils. Ist die Störung klein, so ist der differentielle Wirkungsquerschnitt für die Anregung des Targetkerns gegeben durch:

$$d\sigma = P \cdot d\sigma_R, \quad (\text{A.7})$$

mit dem differentiellen Rutherfordquerschnitt  $d\sigma_R$  und der Wahrscheinlichkeit für die Anregung des Targetkerns  $P$ , welche durch

**Abb. A.1:** Kinematik der semiklassischen Beschreibung.

$$P = \frac{1}{2I_i + 1} \sum_{M_i, M_f} |b_{if}|^2$$

gegeben ist. Hier ist  $I_i$  der Kernspin und  $M_i, M_f$  die magnetischen Quantenzahlen von Ausgangs- und Endzustand. Die Übergangsamplituden errechnen sich in erster Ordnung Störungstheorie aus

$$b_{if} = \frac{1}{i\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \langle f | H_{int}(t) | i \rangle e^{i\omega t} dt, \quad (\text{A.8})$$

wobei  $\omega = (E_f - E_i)/\hbar$  die nukleare Kreisfrequenz zum Übergang  $i \rightarrow f$ , und  $H_{int}(t)$  den Hamiltonoperator der zeitabhängigen elektromagnetischen Wechselwirkung darstellt. Für kleine Projektilgeschwindigkeiten ist der Hauptanteil der Wechselwirkungsenergie durch das Coulombpotential gegeben. Dieses lässt sich nach Multipolmomenten entwickeln gemäß:

$$H_E(t) = \int \rho(\mathbf{r}) \frac{Z_p e}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_p(t)|} d\tau \quad (\text{A.9})$$

$$= 4\pi Z_p e \sum_{\lambda=1}^{\infty} \sum_{\mu=-\lambda}^{+\lambda} \frac{1}{2\lambda+1} r_p^{\lambda-1} Y_{\lambda\mu}(\theta_p, \varphi_p) M^*(E\lambda, \mu), \quad (\text{A.10})$$

mit den Kugelflächenfunktionen  $Y_{\lambda\mu}$  und den elektrischen Multipoloperatoren der Ordnung  $\lambda$ , die definiert sind durch:

$$M(E\lambda, \mu) = \int r^\lambda Y_{\lambda\mu}(\Theta, \Phi) \rho(\mathbf{r}) d\tau. \quad (\text{A.11})$$

Die Integrationen in (A.9) und (A.11) sind über das Kernvolumen durchzuführen. Anschaulich betrachtet bedeutet die Expansion von (A.9) in Multipolmomenten die Aufspaltung der Wechselwirkung in die Wechselwirkungen der einzelnen elektrischen Multipolmomente des Targetkerns mit dem elektrischen Monopolmoment (Punktladung) des Projektils. Der erste Term ( $\lambda=0$ ) ist in der Entwicklung von (A.10) nicht berücksichtigt, da die Monopol-Monopol Wechselwirkung in der Rutherford-Streuung enthalten ist. Setzt man (A.10) und (A.11) in (A.8) ein so ergibt sich:

$$b_{if} = \frac{4\pi Z_p e}{i\hbar} \sum_{\lambda, \mu} \frac{1}{2\lambda+1} \langle I_i m_i | M(E\lambda, \mu) | I_f m_f \rangle S_{E\lambda, \mu}, \quad (\text{A.12})$$

mit den Bahnintegralen

$$S_{E\lambda, \mu} = \int_{-\infty}^{\infty} e^{i\omega t} Y_{\lambda\mu}(\theta_p(t), \varphi_p(t)) [r_p(t)]^{-\lambda-1} dt. \quad (\text{A.13})$$

Einführung der reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten  $B(E\lambda)$ ,

$$B(E\lambda, \mathbf{I}_i \rightarrow \mathbf{I}_f) = \sum_{m_i, m_f, \mu} \left| \langle I_i m_i | M(E\lambda, \mu) | I_f m_f \rangle \right|^2$$

und einsetzen des differentiellen Rutherfordstreuquerschnitts in (A.7) führt zu

$$d\sigma_{E\lambda} = \frac{4\pi Z_P Z_T e^2}{\hbar^2} \cdot a^2 \sin^{-4}\left(\frac{\vartheta}{2}\right) \cdot \frac{B(E\lambda)}{(2\lambda+1)^3} \cdot \sum_{\mu} |S_{E\lambda, \mu}|^2 d\Omega, \quad (\text{A.14})$$

wobei  $a = Z_P Z_T e^2 / mv^2$  die halbe Strecke minimaler Näherung,  $m$  die reduzierte Masse des Systems und  $v$  die Geschwindigkeit des Projektils bezeichnen.

Eine Evaluierung der Bahnintegrale in (A.13) findet sich in [Ald56]. Sie können in Abhängigkeit des Adiabazitätsparameters  $\xi$  dargestellt werden, der gegeben ist durch:

$$\xi = \frac{a\omega}{v} = \frac{Z_P Z_T}{\hbar v} \cdot \frac{\Delta E}{2E}.$$

Das Verhältnis  $a/v$  gibt dabei die Größenordnung der Wechselwirkungszeit wieder und so ist  $\xi$  ein Maß für die Adiabazität der Wechselwirkung. Daher ist es plausibel, dass die Fourieramplituden  $S_{E\lambda}$  in (A.13) für  $\xi > 1$  klein werden. Durch Integration von (A.14) über alle Streuwinkel und Umstellung einzelner Komponenten erhält man als Gesamtergebnis:

$$\sigma_{E\lambda} = \left( \frac{Z_P e}{\hbar v} \right)^2 \cdot a^{-2\lambda+2} \cdot B(E\lambda) \cdot f_{E\lambda}(\xi), \quad (\text{A.15})$$

wobei  $f_{E\lambda}(\xi)$  als die klassische Wirkungsquerschnitt-Funktion bezeichnet wird und im Wesentlichen durch die Bahnintegrale bestimmt wird. Es gilt:  $f_{E\lambda}(\xi) \approx \text{const.}$  für  $\xi < 1$  und  $f_{E\lambda}(\xi) \ll 1$  für  $\xi > 1$ . Werte für  $f_{E\lambda}(\xi)$  finden sich tabellarisch in [Ald56].

Die bisherige Betrachtung vernachlässigt den Effekt des Energieverlustes des Projektils durch die Anregung des Targetkerns. Es lässt sich zeigen, dass eine erhebliche Verbesserung in der Genauigkeit erreicht werden kann, wenn in (A.15) die in der Geschwindigkeit symmetrisierten Ausdrücke:

$$a = \frac{Z_P Z_T e^2}{mv_i v_f} \quad \text{und} \quad \xi = \frac{Z_P Z_T e^2}{\hbar} \cdot \left( \frac{1}{v_f} - \frac{1}{v_i} \right)$$

verwendet werden.



# Referenzen

- [Alb62] ALBERT D., *Kernenergie* **5** (1962) 154.
- [Ald56] ALDER K., BOHR A., HUUS T., MOTTELSON B., AND WINTHER A., *Rev. Mod. Phys.* **28** (1956) 432.
- [Ald75] ALDER K., WINTHER A., *Elektromagnetic Excitation*, North Holland Publishing Company (1975).
- [And89] ANDERS E., GREVESSE N., *Geochim. Cosmochim. Acta* **53** (1989) 197.
- [Arc91] ARCORAGI J.-P., LANGER N., ARNOULD M., *Astron. Astrophys.* **249** (1991) 134.
- [B<sup>2</sup>FH] BURBIDGE E.M., BURBIDGE G.L., FOWLER W.A. AND HOYLE F., *Rev. Mod. Phys.* **115** (1957) 547.
- [Bee81] BEER H., WARD R.A., *Nature* **291** (1981) 308.
- [Bee82] BEER H., MACKLIN R.L., *Phys. Rev.* **C26** (1982) 1404.
- [Ben68] BENSCH F., FLECK C.M., *Neutronenphysikalisches Praktikum*, Hochschultaschenbücherverlag Mannheim (1968).
- [Bek64] BECKURTS K.H., WIRTZ K., *Neutron Physics*, Springer Verlag Berlin (1964).
- [Bet39] BETHE H.A., *Phys. Rev.* **55** (1939) 103 und 434.
- [Boe96] DE BOER J., private Mitteilungen (1996).
- [Bro63] BROSE M., *Nukleonik* **6/3** (1963) 134.
- [Cal88] CALETKA R., HAUSBECK R., KRIVAN V., *J. Radioanal. Nucl. Chem. Art.* **120** (1988) 319.
- [Cam57] CAMERON A.G.W., *Atomic Energy of Canada*, Ltd CRL-41.
- [Col90] COLLINS C.B. CARROLL J.J., SINOR T.W., BYRD J., RICHMOND D.G., TAYLOR K.N., HUBER M., HUXEL N., VON NEUMANN-COSEL P., RICHTER A., SPIELER C., ZIEGLER W., *Phys. Rev.* **C42/5** (1990) R1813.
- [Col92] CARROLL J.J., COLLINS C.B., VON NEUMANN-COSEL P., RICHMOND D.G., RICHTER A., SINOR T.W., TAYLOR K.N., *Phys. Rev.* **C45/1** (1992) 470.

- [Dri97] DRISSI S., private Mitteilungen (1997).
- [Esc84] ESCHNER W., SCHMIDT-OTT W.-D., RUNTE E., GIPPERT L., BEER H., WALTER G., KIRCHNER R., KLEPPER O., ROECKL E., SCHARDT D., *Z. Phys.* **A317** (1984) 281.
- [Fri68] FRITZ J.S., DAHMER L.H., *Anal. Chem.* **40/1** (1968) 20.
- [Gal97] GALLINO R., ARLANDI C., BUSO M., LUGARO M., TRAVAGLIO C., STRANIERO O., CHIEFFI A., LIMONGI M., *Ap.J.* voraussichtlich (1997).
- [Gam48] GAMOV G., *Nature* **162** (1948) 680.
- [Gme69] Gmelins Handbuch der Anorganischen Chemie, Nr.50, Verlag Chemie GmbH (1969).
- [Hai76] HAINEBACH K.L., SCHRAMM D.N., BLAKE J.B., *Ap. J.* **205** (1976) 920.
- [Har76] HARRISON T.G., *Ap. Lett.* **17** (1976) 61.
- [Hel83] HELENE O., *Nucl. Instr. Meth.* **212** (1983) 319.
- [Hol76] HOLMES J.A., WOOSLEY S.E., FOWLER W.A., ZIMMERMAN B.A., *Atom. Data Nucl. Data Tabl.* **18** (1976) 305.
- [How91] HOWARD W.M., MEYER B.S., WOOSLEY S.E., *Ap. J. Lett.* **373** (1991) L5.
- [Hub20] HUBBLE E.P., *Pub. Yerkes Observatory* **4** (1920) 69.
- [Käp89] KÄPPELER F., BEER H., WISSHAK K., *Rep. Progr. Phys.* **52** (1989) 945.
- [Käp90] KÄPPELER F., GALLINO R., BUSO M., PICCHIO G., RAITERI C.M., *Ap. J.* **354** (1990) 630.
- [Kel86] KELLOGG S.E., NORMAN E.B., *Phys. Rev.* **C34/6** (1986) 2248.
- [Kel92] KELLOGG S.E., NORMAN E.B., *Phys. Rev.* **C46/3** (1992) 1115.
- [Kie97] KIENER J., private Mitteilungen (1997).
- [Kla90] KLAY N., Kernforschungszentrum Karlsruhe, KfK 4675 (1990).
- [Lal84] LALLY A.E., GLOMER K.M., *Nucl. Inst. Meth. Phys. Res.* **223** (1984) 259.
- [Loe96] LOEWE M., DE BOER J., MAIER H.J., WÜRKNER M., OLBRATOWSKI P., SREBRNY J., COINSKI J., CZONSNYKA T., IWANICKI J., NAPIORKOWSKI P.J., HAGEMANN G., SLETTEN G., KARAMIAN S.A., VON NEUMANN-COSEL P., RICHTER A., SCHLEGEL C., WOLLERHEIM H.J., *Z. phys.* **A356** (1996) 9.
- [Loe97] LOEWE M., private Mitteilungen (1997).

- 
- [McD64] NEWTON J.O. IN MAC DONALD N., Nuclear Structure and Electromagnetic Interactions, Oliver and Boyd, Edinburg and London (1964).
- [Men96] MENGONI A., private Mitteilungen (1996).
- [Mer52] MERRILL P.W., *Science* **115** (1952) 484.
- [Mil55] MILNER G.W., BARNETT G.A., SMALES A.A., *Analyst* **80** (1955) 380.
- [Mug84] MUGHABGABH J.F., Neutron Cross Sections 1/B (1994).
- [NDS94] BROWNE E., *Nuclear Data Sheets* **71** (1994) 81.
- [NNDC] National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, File ENDF (1996).
- [Nem92] NÉMETH Z., KÄPPELER F., REFFO G., *Astrophys. J.* **392** (1992) 277.
- [Neu96] VON NEUMANN-COSEL P., private Mitteilungen (1996).
- [Nim81] NIMR T. E., DE CORTE F., MOENS L., SIMONITS A., HOSTE J., *J. Radioanal. Chem.* **67** (1981) 421.
- [Nor84] NORMAN E.B., KELLOGG S.E., BERTRAM T., GIL S., WONG P., *Astrophys. J.* **281** (1984) 360.
- [Nor96] NORMAN E.B., private Mitteilung (1996).
- [Pra90] PRANTZOS N., HASHIMOTO M., RAYET M., ARNOULD M., *Astron. Astrophys.* **238** (1990) 455.
- [Rai91a] RAITERI C. M., BUSSO M., GALLINO R., PICCHIO G., *Ap. J.* **371** (1991) 665.
- [Rai91b] RAITERI C. M., BUSSO M., GALLINO R., PICCHIO G., PULLONE L., *Ap. J.* **367** (1991) 228.
- [Rat88] RATYNSKI W., KÄPPELER F., *Phys. Rev.* **C37/2** (1988) 595.
- [Ray87] RAYET M., Lecture Notes in Phys. 287 Springer, Berlin, Heidelberg, New York, (1987) 210.
- [Ray90] RAYET M., PRANTZOS N., ARNOULD M., *Astron. Astrophys.* **227** (1990) 271.
- [Run87] RUNTE E., SCHMIDT-OTT W.-D., ESCHNER W., ROSNER I., KIRCHNER R., KLEPPER O., RYKACZEWSKI K., *Z. Phys.* **A328** (1987) 119.
- [Sau96] SAUTER T., Diplomarbeit, TH Karlsruhe (1996).
- [Sal88] SALOMAN E.B., HUBBELL J.H., SCOTCHFIELD J.H. *Atom. Data Nucl. Data Tabl.* **38/1** (1988) 1.

- [Sch92] SCHÄDEL M. ET AL., *Radiochem. Acta* **57** (1992) 85.
- [Sch94] SCHLEGEL C., VON NEUMANN-COSEL P., NEUMEYER F., RICHTER A., STRAUCH S., *Phys. Rev. C* **50** (1994) 2198.
- [Sim84] SIMONITS A., DE CORTE F., NIMR T. E., MOENS L., HOSTE J., *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **67** (1981) 397.
- [Ste53] STEVENSON P.C., HICKS H.G., *Anal. Chem.* **25/10** (1953) 1517.
- [The95] THEISS C., Dissertation, Universität Heidelberg (1995).
- [TRI86] BROWNE E., FIRESTONE R.B., Table of Radioactive Isotopes, J. Wiley & Sons, New York (1986).
- [Wis82] WISSHAK K., WICKENHAUSER J., KÄPPELER F., REFFO G., FABBRI F., *Nucl. Sci. Eng.* **81** (1982) 396.
- [Woo90] WOOSLEY S.E., HARTMANN D.H., HOFFMANN R.D., HAXTON W.C., *Ap. J.* **356** (1990) 272.
- [Yam65] YAMAMOTO H., YAMAMOTO K., *J. Nucl. Sci. Techn.* **2/10** (1965) 421.
- [Yok83] YOKOI K., TAKAHASHI K., *Nature* **305** (1983) 198.
- [Zie80] ZIEGLER. J.F., Handbook of Stopping Cross Sections for Energetic Ions in All Elements, **5**, Pergamon Press, New York (1980).
- [Zim93] ZIMMERMANN H.P. ET AL., *Radiochem. Acta* **60** (1993) 11.