

Aktivierungsexperimente mit  
Neutronen mittlerer Energien  
und  
die Produktion kosmogener Nuklide  
in extraterrestrischer Materie

Dem Fachbereich Physik  
der Universität Hannover

zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften

Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Phys.

**Sonja Neumann**

geboren am

20. Januar 1970

in Berlin

1999

Referent: Prof. Dr. Rolf Michel  
Korreferent: Prof. Dr. Martin Henzler

Tag der Promotion: 11. Februar 1999

## **Aktivierungsexperimente mit Neutronen mittlerer Energien und die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie**

In dieser Arbeit wurden zur Bestimmung integraler Wirkungsquerschnitte für die Restkernproduktion in Neutronen-induzierten Reaktionen Aktivierungsexperimente mit quasimonoenergetischen Neutronen mittlerer Energien bis hinauf zu 180 MeV durchgeführt. Da es bislang in unserer Arbeitsgruppe keine Möglichkeit für derartige Untersuchungen gab, wurde in einem ersten Schritt die Machbarkeit solcher Experimente an der Neutronenbeamline des The Svedberg Laboratoriums (TSL), Uppsala (Schweden), untersucht und festgestellt. Auf Basis dieser positiven Ergebnisse wurde dort eine Anlage installiert, mit der nun routinemäßig Aktivierungsexperimente mit  ${}^7\text{Li}(p,n)$ -Neutronen einer Peakflußdichte von etwa  $0.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \mu\text{A}^{-1} (\text{mmLi})^{-1}$  durchgeführt werden können.

Daraufhin wurde im Rahmen einer europäischen Kollaboration eine langfristig angelegte Bestrahlungsreihe begonnen; erst nach deren Abschluß können dann die Anregungsfunktionen mittels Entfaltungsmethoden bestimmt werden. In dieser Arbeit wurden dafür aus den ersten Experimenten insgesamt 550 Responseintegrale an den kosmophysikalisch interessanten Elementen C, O, Al, Si, Fe, Co, Ni, Cu, Ag, Te und Pb mit einer minimalen Unsicherheit von etwa 10 %  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen. Im Gegensatz zur sonst am ZSR üblichen Meß- und Auswertepaxis erforderten diese  $\gamma$ -spektrometrischen Messungen sowie die Auswertungen die Einführung neuer Verfahren. Diese umfaßten die Berücksichtigung echter Koinzidenzen, der Selbstabsorption sowie der Eigenschaft des Targets als Volumenprobe.

In Ergänzung zu den TSL-Experimenten wurden an der Université Catholique de Louvain ebenfalls dieselben Targetelemente, aber mit Neutronen mit Peakenergien unterhalb von 70 MeV bestrahlt. Dabei wurde die spektrale Flußdichte der Neutronen in Kollaboration mit der PTB experimentell bestimmt.

Da eine solche Messung am Ort der Bestrahlungskammer am TSL nicht möglich ist, wurde eine semiempirische Methode entwickelt, mit der die spektralen Flußdichten physikalisch sinnvoll erstellt werden. Diese dienten als Eingangsdaten für LAHET-Rechnungen zur Simulation des Transports der Neutronen durch die TSL-Bestrahlungseinrichtung, um Aussagen über Änderungen der spektralen Flußdichte im Targetstapel treffen zu können. Daraus resultierende Diskrepanzen von bis zu 14 % zwischen den theoretischen und den experimentellen Aktivitätsverläufen zeigen, daß die theoretische Modellierung das experimentelle Flußdichtemonitoring über den Stapel nicht ersetzen kann.

Mit dem Ziel, die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie zu modellieren, wurden die Anregungsfunktionen Protonen-induzierter Reaktionen ausgewählter Produkte für Protonenenergien zwischen 60 MeV und 2.6 GeV durch Messungen vervollständigt. In Zusammenarbeit mit dem Centre d'Etudes Nucléaires Bordeaux, Bordeaux (Frankreich), wurden Wirkungsquerschnitte der langlebigen und stabilen Krypton-Isotope für Rb, Sr, Y und Zr gemessen. Darüber hinaus lieferte die Auswertung von Ti-, Fe- und Ni-Targets weitere 338 Wirkungsquerschnitte, wobei insbesondere die Daten für  ${}^{44}\text{Ti}$  jetzt einen konsistenten Datensatz bilden. Mit X-Spektrometrie chemisch unbehandelter Eisentargets wurden erstmals in unserer Arbeitsgruppe Wirkungsquerschnitte für  ${}^{55}\text{Fe}$  bestimmt. Ergänzend dazu wurden mit Messungen von Dicktargetproduktionsraten der Krypton-Isotope sowie von  ${}^{44}\text{Ti}$  mit Hilfe von Entfaltungsmethoden Anregungsfunktionen Neutronen-induzierter Reaktionen bereitgestellt.

Die Modellierung von  ${}^{57}\text{Co}$ ,  ${}^{54}\text{Mn}$ ,  ${}^{22}\text{Na}$  und  ${}^{44}\text{Ti}$  in Meteoroiden durch die GCR hatte Aussagen über den spatialen Gradienten der GCR beziehungsweise die Aktivierung über Gleissberg Zyklen zum Ziel. Die großen Unsicherheiten der gemessenen Daten von Meteoriten stehen jedoch sinnvollen Interpretationen hierzu noch im Wege. Dagegen beschreiben die Modellrechnungen die GCR-Produktion der Krypton-Isotope in Knyahinya und St. Severin gut, wenn die chemische Komposition als Eingabe in die Rechnungen eine gute Qualität hat. In Zukunft sollten die bisher für die  ${}^{81}\text{Kr}$ -Kr-Datierung benutzten empirischen Korrelationen durch die physikalisch sinnvoll berechneten Zusammenhänge ersetzt werden.

Zur Bestimmung des langzeitgemittelten SCR-Spektrums wurden  ${}^{22,21}\text{Ne}$ - und  ${}^{26}\text{Al}$ -Tiefenprofile von Oberflächenproben lunarer Gesteine modelliert. Es wurde jedoch kein Parametersatz gefunden, der *alle* Daten konsistent beschreibt. Rechnungen für weitere Nuklide ( ${}^{53}\text{Mn}$ ,  ${}^{38}\text{Ar}$ ) und die Berücksichtigung der exakten Steingeometrie bei der SCR- und GCR-Modellierung sind zur Klärung des Problems nötig.

Abstract

Neumann, Sonja

### **Activation Experiments with Medium-Energy Neutrons and the Production of Cosmogenic Nuclides in Extraterrestrial Matter**

In this work, activation experiments were performed with quasimonoenergetic medium-energy neutrons of up to 180 MeV to determine integral cross sections for the production of residual nuclides in neutron-induced reactions. Since there existed up to now no possibility for such investigations in our working group, the feasibility of such experiments at the neutron beamline of the The Svedberg Laboratory (TSL), Uppsala (Sweden), was investigated and shown in a first step. On the basis of these positive results a facility was installed which allows for running activation experiments routinely with  ${}^7\text{Li}(p,n)$ -neutrons of a peak flux density of about  $0.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}\mu\text{A}^{-1}(\text{mmLi})^{-1}$ .

Thereon a long-term set of activation experiments was started in the framework of an european collaboration; after completion of this series excitation functions will be determined using unfolding methods. For this 550 response integrals were measured by means of  $\gamma$ -spectrometry with a minimal uncertainty of about 10 % in this work in the first experiments covering the cosmophysical relevant elements C, O, Al, Si, Fe, Co, Ni, Cu, Ag, Te, and Pb. In contrast to the usual measurement and evaluation methods at ZSR these  $\gamma$ -spectrometric measurements and their evaluation required the introduction of new procedures. These contained the consideration of real coincidences, self absorption effects and the property of the target as a volume source.

Supplementary to the TSL experiments the same target elements were irradiated at Université Catholique de Louvain, however, with neutrons of peak energies below 70 MeV. The spectral flux density of the neutrons was experimentally determined in collaboration with PTB in these experiments.

Since such a measurement is not possible at the location of the irradiation chamber at TSL, a semi-empirical method was developed to set up physical meaningful spectral flux densities. These served as an input for LAHET simulation calculations of the neutron transport through the TSL-irradiation chamber to investigate the change of the spectral flux density within the stack. Discrepancies of up to 14 % between relative experimental and theoretical activities show that the theoretical modelling cannot replace the experimental flux density monitoring within the stack.

To model the production of cosmogenic nuclides in extraterrestrial matter, excitation functions of proton-induced reactions of some selected products for energies between 60 MeV and 2.6 GeV were completed with measured data. In collaboration with the Centre d'Études Nucléaires Bordeaux, Bordeaux (France), cross sections for stable and long-lived Krypton-Isotopes from Rb, Sr, Y and Zr were measured. In addition, the evaluation of Ti-, Fe- and Ni-targets resulted in 338 cross sections - so that especially the data for  ${}^{44}\text{Ti}$  form a consistent data set now. For the first time in our working group cross sections were determined for the production of  ${}^{55}\text{Fe}$  in iron by means of X-spectrometry without preceding chemical processing. In addition, using measured thick target production rates of the krypton isotopes as well as of  ${}^{44}\text{Ti}$  excitation functions of the neutron-induced reactions were determined with unfolding methods.

The modelling of the GCR-production of  ${}^{57}\text{Co}$ ,  ${}^{54}\text{Mn}$ ,  ${}^{22}\text{Na}$  and  ${}^{44}\text{Ti}$  in meteoroids was performed with the intention to investigate the spatial gradient of the GCR and the activation over terms of the Gleissbergcycle, respectively. However, the large uncertainties of the measured data from meteorites do not yet allow meaningful interpretations. In contrast, the GCR production of the Krypton-Isotopes in Knyahinya and St. Severin is described well by the model calculations if the chemical composition as an input for the calculations is of good quality. For further investigations the up to now applied empirical correlations for the  ${}^{81}\text{Kr}$ -Kr-dating should be replaced by the calculations based on a physical model.

To determine the long-term averaged SCR-spectrum  ${}^{22,21}\text{Ne}$  and  ${}^{26}\text{Al}$ -depth profiles were modelled in the surfaces of lunar rocks. However, no parameter set was found which describes *all* data consistently. To clarify this problem calculations for further nuclides ( ${}^{53}\text{Mn}$ ,  ${}^{38}\text{Ar}$ ) and the consideration of the exact stone geometry are necessary.

**[Aktivierungsexperimente;  
integrale Wirkungsquerschnitte Neutronen-induzierter Reaktionen;  
Produktion kosmogener Nuklide]**

**[Activation experiments;  
integral cross sections of neutron-induced reactions;  
production of cosmogenic nuclides]**



4.5	Analyse der Unsicherheiten	48
4.5.1	Unsicherheit der Energie	48
4.5.2	Unsicherheit des Wirkungsquerschnittes	48
4.5.2.1	Unsicherheiten durch die Experimentiertechnik	48
4.5.2.2	Unsicherheiten bei den Messungen	49
4.5.2.3	Unsicherheiten bei der Auswertung und Berechnung der Wirkungsquerschnitte	49
4.6	Möglichkeiten und Grenzen der $\gamma$ -Spektrometrie	52
5	Experimentelle Ergebnisse	54
5.1	Ergebnisse der Protonenbestrahlungen	54
5.1.1	Wirkungsquerschnitte für die Targetelemente Ti, Fe und Ni	54
5.1.2	Das Produktnuklid $^{44}\text{Ti}$	55
5.1.3	Das Produktnuklid $^{55}\text{Fe}$	57
5.1.4	Wirkungsquerschnitte für Edelgase	58
5.2	Ergebnisse der Neutronenbestrahlungen	59
5.2.1	Ergebnisse des Testexperimentes	59
5.2.1.1	Wahl der Bestrahlungsposition	59
5.2.1.2	Aussagen über die spektrale Flußdichte und den Raumuntergrund	61
5.2.2	Die Flußdichte der Neutronen in der Marble Hall	64
5.2.3	Allgemeine Aspekte der Bestrahlung in der Targetkammer	67
5.2.3.1	Abhängigkeit der Aktivierung vom Targetquerschnitt	67
5.2.3.2	Abhängigkeit der Aktivierung von der Position im Stack	68
5.2.3.2.1	Änderung der spektralen Flußdichte bei Stackdurchgang	68
5.2.3.2.2	Quantifizierung der Abnahme der Flußdichte	70
5.2.3.3	Einfluß sekundärer Protonen	72
5.2.4	Ergebnisse der Experimente UPPNOC/OD	73
5.2.5	Responseintegrale der Restkernverteilungen	74
5.3	Fazit der experimentellen Ergebnisse	76
6	Theoretische Betrachtungen zum Neutronentransport im Stack	77
6.1	Die spektrale Flußdichte der Neutronen der $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ -Reaktion	77
6.1.1	Komponenten der spektralen Flußdichte	77
6.1.1.1	Monoenergetische Komponenten des Hochenergiepeaks	77
6.1.1.2	Komponenten kontinuierlicher Energien	78
6.1.2	Semiempirische Beschreibung der spektralen Flußdichte	79
6.1.2.1	Die spektrale Flußdichte der Peakneutronen	79
6.1.2.2	Die spektrale Flußdichte der kontinuierlichen Komponente	80
6.1.3	Erstellung der spektralen Flußdichte	83
6.2	Transportrechnungen	84
6.2.1	Das Setup der LAHET-Rechnungen	85
6.2.2	Wahl der primären quasimonoenergetischen spektralen Fluenzen	86
6.2.3	Ergebnisse der Transportrechnungen	87
6.2.3.1	Aufbau der Sekundärteilchenfluenzen	87
6.2.3.2	Verhalten der Primärteilchenfluenzen	91
6.2.3.3	Änderung der quasimonoenergetischen spektralen Fluenz	92
6.2.3.4	Vergleich der theoretischen und experimentellen Responseintegrale	94
6.2.4	Zusammenfassende Betrachtung	96
7	Die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie	97
7.1	Die Abhängigkeit der Produktionsraten vom Modulationsparameter	98

7.1.1	Langlebige und stabile Radionuklide	98
7.1.2	Kurzlebige Radionuklide	99
7.1.2.1	Die Nuklide $^{57}\text{Co}$ , $^{54}\text{Mn}$ und $^{22}\text{Na}$	99
7.1.2.2	Das Nuklid $^{44}\text{Ti}$	102
7.2	Die Produktion der kurzlebigen Nuklide $^{54}\text{Mn}$ , $^{22}\text{Na}$ und $^{57}\text{Co}$	102
7.2.1	Der Meteorit Jilin	102
7.2.2	Der Meteorit Mbale	104
7.2.3	Der Meteorit St. Robert	105
7.2.4	Zusammenfassende Bewertung	106
7.3	Die Produktion von $^{44}\text{Ti}$	107
7.3.1	Dicktarggetproduktionsraten für $^{44}\text{Ti}$	107
7.3.2	$^{44}\text{Ti}$ -Produktionsraten in Meteoroiden	110
7.3.3	Vergleich der Modellrechnungen mit experimentellen Werten	111
7.3.4	Zusammenfassende Bewertung	114
7.4	Die Produktion kosmogener Krypton-Isotope	114
7.4.1	Dicktarggetproduktionsraten für die Krypton-Isotope	116
7.4.2	Produktionsraten in Meteoroiden	118
7.4.3	Kosmogenes Krypton in Knyahinya	120
7.4.4	Kosmogenes Krypton in St. Severin	123
7.4.5	Zusammenfassende Bewertung	125
7.5	Die Produktion kosmogener Nuklide in der Mondoberfläche	125
7.5.1	Langlebige Radionuklide im Apollo 15-Drill Core	125
7.5.2	Krypton-Isotope in 68815	127
7.6	Das über die letzten 2 Ma langzeitgemittelte SCR-Spektrum	129
7.6.1	Durchführung der SCR-Rechnungen	131
7.6.2	Der Stein 68815	132
7.6.3	Der Stein 61016	135
7.6.4	Der Stein 64455	137
7.6.5	Ausblick	138
8	Zusammenfassung	140
	Literaturverzeichnis	141
	Anhang A - In dieser Arbeit ausgewertete Targets (Protonen)	147
	A.1 - Titan	147
	A.2 - Eisen	148
	A.3 - Nickel	148
	Anhang B - Wirkungsquerschnitte für die Protonen-Induzierte Restkernproduktion	149
	B.1 Wirkungsquerschnitte für die Produktion von $^{55}\text{Fe}$ aus Eisen	149
	B.2 Wirkungsquerschnitte für die Produktion von $^{44}\text{Ti}$	150
	B.3 Wirkungsquerschnitte aus Titan, Eisen und Nickel	150
	Anhang C - Dicktarggetproduktionsraten für $^{44}\text{Ti}$	153
	Anhang D - In dieser Arbeit ausgewertete Targets (Neutronen)	154
	Anhang E - Responseintegrale	156
	E.1 Experiment LOUV01	156
	E.2 Experiment LOUV02	156
	E.3 Experiment UPPN01	157
	E.4 Experiment UPPN09	159

---

E.5 Experiment UPPN0A .....	162
E.6 Experiment UPPN0B .....	162
E.7 Experiment PSIN01 .....	164
E.8 Experiment PSIN02 .....	164
Anhang F - Setup der LAHET-Rechnungen .....	165
F.1 Inh .....	165
F.2 Int .....	165
Danksagung .....	166

## Abkürzungsverzeichnis

A	Aktivität, Massenzahl	$s^{-1}$ , Bq = $s^{-1}$
AMS	Accelerator Mass Spectroscopy	
ATW	Accelerator driven Transmutation of Waste	
A.U.	Astronomische Einheit	m
c	Lichtgeschwindigkeit	$ms^{-1}$
d	Abstand	m
e	Elementarladung	C
E	Energie	MeV
$E_\gamma$	Energie eines $\gamma$ -Quants	KeV, MeV
$E_S$	Schwellenenergie einer Kernreaktion	MeV
FC	Fission Chamber	
GCR	Galactic Cosmic Ray	
h	Probendicke	mm
$I_\gamma$	Entkommwahrscheinlichkeit	
$J_0$	$4\pi$ -Integrale Flußdichte, siehe Gleichung (1.4)	$cm^{-2}s^{-1}$
LNS	Laboratoire National Saturne	
LSA	Least-Squares-Adjustment	
NP	Nettopeakfläche	
$N_L$	Avogadro-Konstante	$mol^{-1}$
$N_T$	Anzahl der Targetkerne	
P	Produktionsrate	$g^{-1}s^{-1}$
PSI	Paul-Scherrer-Institut	
PTB	Physikalisch-Technische Bundesanstalt	
$R_0$	charakteristische Rigidity	MV
R	Radius; Responseintegral	cm; $s^{-1}$
SCR	Solar Cosmic Ray	
$t_{irr}$	Zeitraum der Bestrahlung	s
$t_M$	Meßzeitraum	s
$t_{BoC}$	Zeitpunkt des Beginns der Messung	
$t_{BoI}$	Zeitpunkt des Beginns der Bestrahlung	
$t_{EoC}$	Zeitpunkt des Endes der Messung	
$t_{EoI}$	Zeitpunkt des Endes der Bestrahlung	
TFBC	Thin-Film-Breakdown-Counter	
TOF	Time of Flight	
TSL	The Svedberg Laboratory	
$T_{1/2}$	Halbwertszeit	s
UCL	Université Catholique de Louvain	
Z	Ladungszahl	
$\beta$	Geschwindigkeit/Lichtgeschwindigkeit	
$\epsilon$	Nachweiswahrscheinlichkeit	
$\varphi$	Flußdichte	$cm^{-2}s^{-1}$
$\varphi_E$	spektrale Flußdichte	$cm^{-2}s^{-1}MeV^{-1}$
$\Phi$	Fluenz	$cm^{-2}$
$\Phi_E$	spektrale Fluenz	$cm^{-2}MeV^{-1}$
$\rho$	Dichte	$gcm^{-3}$
$\lambda$	Zerfallskonstante	$s^{-1}$
$\sigma$	Wirkungsquerschnitt	$cm^2$ , mb = $10^{-27}cm^2$
$\mu$	Absorptionskoeffizient für $\gamma$ -Quanten	$cm^2g^{-1}$

# 1 Einleitung

Radioaktive Stoffe kommen in großem Umfang in der Natur vor. Viele Radionuklide in der Umwelt sind *natürlichen* Ursprungs, wie etwa die primordialen Radionuklide und Glieder der natürlichen Zerfallsreihen oder die durch die kosmische Strahlung produzierten kosmogenen Nuklide. Die speziellen Eigenschaften der radioaktiven Kerne erzeugten für den Menschen auch einen gewissen Bedarf an solchen Kernen, so daß heute eine große Vielfalt *künstlich* produzierter radioaktiver Nuklide existiert. Sie werden in Medizin und Technik eingesetzt, entstehen aber auch als Abfallprodukte, so zum Beispiel als Spaltprodukte in Kernreaktoren.

Für viele Anwendungen werden spezielle Radionuklide gezielt durch Kernreaktionen erzeugt. Dazu bestrahlt man Targetkerne T mit hochenergetischen, schweren Teilchen p, das heißt, mit Teilchen der Massenzahlen  $A \geq 1$  amu und Energien  $E \geq 1$  MeV/amu. Bei den dabei ausgelösten Kernreaktionen werden Nukleonen, in der Gesamtmenge im folgenden als X bezeichnet, aus dem Kern entfernt und so Restkerne B produziert. Ein solcher Prozeß wird kurz durch die Reaktionsgleichung  $T(p,X)B$  beschrieben. Bei solchen Bestrahlungen entstehen jedoch neben dem eigentlich gewünschten radioaktiven Nuklid auch eine ganze Reihe von Nebenprodukten. Um zu einer vollständigen Beschreibung solcher Bestrahlungsszenarien und damit gleichzeitig zur Planung einer optimalen Erzeugung eines gewünschten Produktes zu gelangen, ist die Kenntnis grundlegender, nuklearer Daten unabdingbar.

Deren Bedeutung wird im folgenden herausgearbeitet werden. Dazu soll zunächst auf die Wechselwirkung der verwendeten Projektile mit Materie eingegangen werden.

## 1.1 Die Wechselwirkung schwerer Teilchen mit Materie

Wechselwirken schwere geladene Teilchen der Ladungszahl  $Z_p$  und Geschwindigkeit  $v$  über unelastische Stöße mit gebundenen Elektronen des Absorbers, so erfahren sie Ionisationsbremsung. Bei diesem, die Bremsung der Projektile dominierenden Prozeß, bewirkt die abgegebene Energie im Absorber (Ladungszahl  $Z_T$ , Atommasse  $A_T$  und Dichte  $\rho$ ) Ionisation beziehungsweise Anregung der Atome respektive Moleküle. Das Bremsvermögen, mathematisch beschrieben durch die Bethe-Bloch-Gleichung [JA82, FA63], hängt dabei im wesentlichen vom mittleren Ionisationspotential des Absorbers ab und ist proportional zu  $Z_T/A_T \cdot Z_p^2/v^2$ . Demgemäß erfahren Teilchen hoher Ladungszahl und geringer Energie in Absorbern hoher Ladungszahl ein hohes Maß an Abbremsung.

Im Gegensatz zu den geladenen Teilchen verlieren die elektrisch neutralen Neutronen ihre Energie über elastische und unelastische Stöße mit dem sie umgebenden Material. Werden Neutronen bei einer Kernreaktion emittiert, so verlieren sie durch Stöße mit dem sogenannten Moderator solange Energie bis sie mit ihm im thermischen Gleichgewicht stehen; dieser Vorgang wird Moderation genannt, die im thermischen Gleichgewicht mit ihrer Umgebung stehenden Neutronen 'thermische Neutronen'.

Wenn die Projektile jedoch mit dem Kern selbst wechselwirken, können sie eine Veränderung der Nukleonenzahl des Kernes bewirken. Es findet eine Kernreaktion  $T(p,X)B$  statt, deren Verlauf entscheidend von der Energie des einfallenden Teilchens abhängt. Dies wird einsichtig, verdeutlicht man sich, daß nach de Broglie der Projektilenergie eine Wellenlänge zugeordnet ist. Dementsprechend finden bei großen Wellenlängen Wechselwirkungen vorwiegend mit dem Kern als Ganzem statt, bei kleineren sind Wechselwirkungsprozesse mit einzelnen Nukleonen wahrscheinlicher. Deshalb können solche Kernreaktionen bei verschiedenen Energien bislang nur mit unterschiedlichen Modellen erklärt werden, deren Gültigkeitsbereiche fließend ineinander übergehen.

Für Projektilenergien kleiner als 50 MeV finden vorwiegend direkte Reaktionen und Compoundkernreaktionen statt. Direkte Reaktionen zeichnen sich durch die kurze Wechselwirkungszeit in der Größenordnung von  $10^{-22}$  s aus, die der Dauer des Durchganges des Projektils durch den Kern entspricht. Dieser Reaktionstyp schließt direkte elastische Streuprozesse an einzelnen Nukleonen sowie die Absorption des Projektils mit nachfolgender prompter Emission weniger Nukleonen ein.

Compoundkernreaktionen dagegen weisen wesentlich längere Reaktionsdauern in der Größenordnung von  $10^{-16}$  s auf. Das einfallende Projektil wird vom Targetkern eingefangen und bildet mit ihm einen Compoundkern, in dem die Anregungsenergie auf die Nukleonen statistisch gleichverteilt wird, wodurch die Information über die Entstehung des Compoundkernes unter Wahrung der Erhaltungssätze verloren geht. Die anschließende Abgabe der Energie erfolgt durch eine weitgehend isotrope Verdampfung [BO36] von Nukleonen und komplexen Teilchen sowie in Form von  $\gamma$ -Emission. Infolge der für sie fehlenden Coulombbarriere werden Neutronen dabei gegenüber geladenen Teilchen leichter emittiert.

Liegt die Projektilenergie im Bereich von 20 MeV bis hinauf zu einigen 100 MeV, werden bereits Teilchen emittiert, bevor die statistische Gleichverteilung der Anregungsenergie abgeschlossen ist - dies wird als Präequilibriumzerfall [BL71] bezeichnet. Für Primärenergien oberhalb von 100 MeV wird die de Broglie-Wellenlänge des Projektils klein gegenüber den intranukleonischen Abständen, so daß für die dann stattfindenden Spallationsreaktionen das von Serber vorgeschlagene Zweistufenmodell [SE47] (Intra-Nuclear-Cascade/Evaporation-Modell (INC/E)) Anwendung findet. Dabei werden in einer ersten Phase, der „knock on“-Phase, als Folge der *intranuklearen* Stoßkaskade hochenergetische Nukleonen vorzugsweise in Vorwärtsrichtung emittiert. In der zweiten, langsameren Phase regt sich der Kern durch isotrope Verdampfung einzelner Nukleonen oder Nukleonencluster ab.

Als Nebenprodukte der Kernreaktionen entstehen also neben den eigentlichen Restkernen auch die sogenannten sekundären Teilchen. Dies sind überwiegend Neutronen und Protonen, aber auch leichte komplexe Teilchen. Die Energien  $E_p$  dieser Teilchen umfassen das ganze Energiespektrum von wenigen MeV bei verdampften Teilchen bis hin zu projektilähnlichen Energien bei knock-on-Teilchen. Daraus folgt, daß diese Sekundärteilchen wiederum Kernreaktionen auslösen können, was zur sogenannten *internuklearen* Kaskade führt.

Ist in einem Target die Erzeugung der Restkerne durch die sekundären Projektile, die sekundäre Produktion, vernachlässigbar klein, so spricht man von einem dünnen Target. Im sogenannten dicken Target jedoch haben die sekundären Teilchen einen nicht vernachlässigbaren Beitrag zur Gesamtproduktion eines Nuklides. Als Beispiel sind in Abbildung 1.1 die spektralen Flußdichten  $\phi_E$  der sekundären Protonen und Neutronen sowie die der primären Protonen in einer Gabbrokugel dargestellt, die homogen und isotrop mit 1.6 GeV Protonen bestrahlt wurde. Die sekundären Teilchenfelder sind derart ausgeprägt, daß beispielsweise ein vorwiegend durch niederenergetische Teilchen produziertes Produkt wie  $^{54}\text{Mn}$  aus Fe im Zentrum der Kugel zu etwa 80 % durch sekundäre Neutronen und zu 16 % durch sekundäre Protonen produziert wird [LY96].

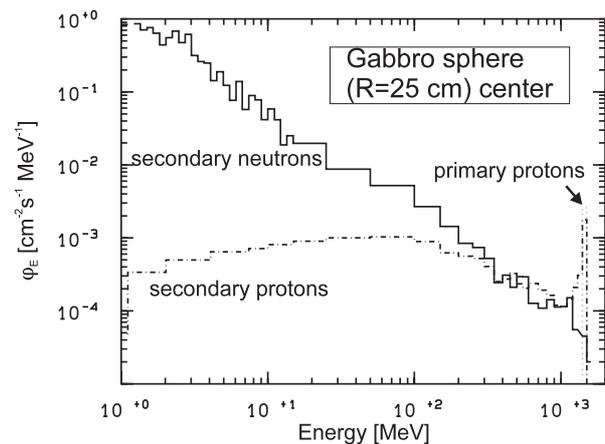


Abbildung 1.1 Spektrale Flußdichten  $\phi_E$  im Zentrum einer mit 1.6 GeV-Protonen homogen und isotrop bestrahlten Gabbrokugel mit 25 cm Radius [LU93].

Betrachtet man die Produktionsrate  $P_B$  [ $\text{g}^{-1}\text{s}^{-1}$ ] eines Nuklides B in einem dicken Target, so muß diese als Summe der durch die einzelnen Teilchensorten induzierten Produktionsraten  $P_{Bp}$  geschrieben werden. Diese wiederum lassen sich durch Faltung der spektralen Flußdichten  $\phi_E$  mit der Wahrscheinlichkeit  $\sigma_p(E_p)$ , daß eine Kernreaktion  $T(p,X)B$  stattfindet, berechnen:

$$P_B = \sum_p P_{Bp} = N_L \cdot A_T^{-1} \cdot \sum_p \int \sigma_p(E_p) \cdot \phi_E(E_p) dE_p \quad (1.1)$$

Dabei ist  $N_L$  die Avogadrozahl und  $\sigma_p(E_p)$  der für das Nuklid B spezifische Produktionswirkungsquerschnitt, dessen Gesamtheit als Funktion der Energie  $E_p$  als Anregungsfunktion bezeichnet wird. Die Definition von  $\sigma_p(E_p)$  wird in Kapitel 3.1.1 gegeben.

## 1.2 Eingangsdaten zur Berechnung von Produktionsraten

Gleichung (1.1) zeigt, daß für eine präzise Berechnung der Produktion von Restkernen die genaue Kenntnis nuklearer Daten unerlässlich ist. Die spektralen Flußdichten der Teilchenfelder sowie die Anregungsfunktionen der betrachteten Reaktion sind diese Eingangsgrößen. Wie man diese erhält, wird im folgenden gezeigt.

Die spektrale Flußdichte in dicken Targets ist experimentell nicht zu bestimmen. Daher wird diese mit eigens auf diese Berechnungsgröße optimierten Monte-Carlo-Programmen berechnet. Diese Computer-codes benutzen physikalische Modelle für die Berechnung der Wechselwirkung der betrachteten Teilchen mit der Targetmaterie in Kombination mit der zufälligen Auswahl der Bedingungen für die stattfindenden Wechselwirkungen. Diese Berechnungsmethode für die spektralen Flußdichten wurde einer eingehenden Validierung unterzogen [AM92, KO89].

Auch die Anregungsfunktionen der Nukleonen-induzierten Reaktionen können durch Modellrechnungen bereitgestellt werden. Wie jedoch ein Vergleich [MI97] von mit verschiedenen physikalischen Modellen berechneten Wirkungsquerschnitten Protonen-induzierter Reaktionen mit experimentellen Daten zeigte, ist kein Code zu einer Berechnung mit der für die Anwendungen benötigten Genauigkeit in der Lage. Ein Faktor zwei in den Abweichungen zwischen Theorie und Experiment wird bereits als gut angesehen, was jedoch für die Praxis völlig unzureichend ist. Eine experimentelle Bestimmung dieser Wirkungsquerschnitte ist daher unumgänglich.

Aus diesem Grunde ist für Protonen bereits früh [MI79, MI80] von unserer Gruppe systematisch mit Bestrahlungen einer ganzen Reihe von kosmo- und kernphysikalisch interessanten Targetelementen begonnen worden. Die dafür benötigten Beschleunigeranlagen zur Abdeckung der Energien von niedrigsten Schwellenenergien bis hin zu einigen GeV stehen in Europa zur Verfügung, so daß eine Vielzahl von Anregungsfunktionen für interessante Reaktionen vollständig ausgemessen sind.

Während die Experimentiertechnik zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten Protonen-induzierter Restkernproduktion zum Standard geworden ist, stellt sich diese im Falle der Neutronen aus den unten genannten Gründen als wesentlich aufwendiger dar. Daher wurde bislang auch ein *indirekter* Ansatz zur Aufstellung von Anregungsfunktionen Neutronen-induzierter Reaktionen verfolgt, der unter kontrollierten Bestrahlungsbedingungen durchgeführte Dicktargetexperimente heranzieht. Mit den berechneten spektralen Teilchenflußdichten, den experimentell bestimmten Anregungsfunktionen für die Protonen-induzierten Reaktionen und den gemessenen Aktivitäten für ein Produkt nuklid aus einem Target, das im dicken Target plziert war, lassen sich die Anregungsfunktionen für Neutronen-induzierte Reaktionen entfalten [LY96].

Mit diesen können erste Berechnungen für Aktivierungsprobleme durchgeführt werden. Allerdings bilden diese Anregungsfunktionen lediglich einen Satz, der konsistent mit den im dicken Target gemessenen Aktivitäten ist. Diese Übereinstimmung hat nur eine begrenzte Aussagekraft über die Korrektheit der Wirkungsquerschnitte der Neutronen-induzierten Reaktionen. Eine Verbesserung dieser Daten mit Experimenten, bei denen *direkt* mit Neutronen bestrahlt wird, ist daher dringend erforderlich.

Die direkte Bestrahlung mit Neutronen hat jedoch mit der Schwierigkeit zu kämpfen, daß Neutronen infolge ihrer fehlenden Ladung nicht auf die gewünschte Energie beschleunigt werden können. Man erzeugt daher über eine Kernreaktion wie beispielsweise  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  sogenannte quasimonoenergetische Neutronen. Abbildung

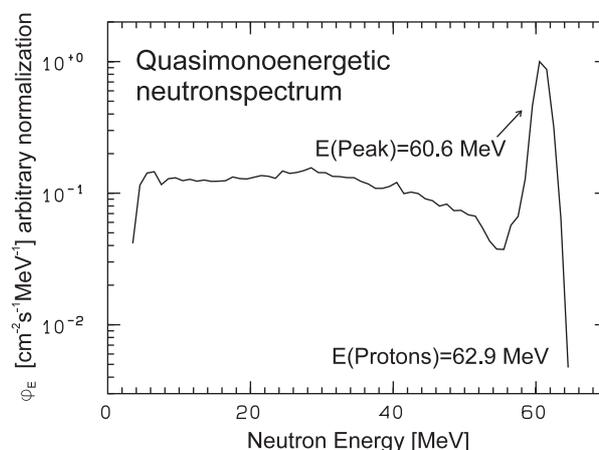


Abbildung 1.2 Beispiel eines quasimonoenergetischen Neutronenspektrums, das über die Reaktion  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  erzeugt wurde [SC97].

1.2 zeigt die spektrale Flußdichte derart produzierter Neutronen, die einen durch die direkte (p,n)-Reaktion erzeugten, hochenergetischen Peak knapp unterhalb der Protonenenergie aufweist und einen sogenannten „low-energy-tail“ an niederenergetischen Neutronen, der durch Konkurrenzreaktionen erzeugt wird. Aktivierungsexperimente mit solchen Neutronenfeldern haben daher den Nachteil, daß die Aktivitäten der Restkerne die Information über den gesamten Energiebereich der einfallenden Neutronen speichern. Zudem können deren Spektren nur mit aufwendigen experimentellen Techniken gemessen werden [SC97].

Eine weitere Erschwernis kommt dadurch hinzu, daß die erzeugten Neutronen - selbst Produkte einer Kernreaktion - nur eine im Vergleich zu Protonenbestrahlungen sehr viel geringere Flußdichte im Verhältnis von etwa  $10^{-5}$  aufweisen. Daraus ergibt sich die Schwierigkeit, bei einer Aktivierung genügend Restkerne zu erzeugen, die mit üblichen Meßmethoden nachgewiesen werden können. Schließlich sind viele Bestrahlungen unterschiedlicher Maximalenergien nötig; da nur aus der Gesamtheit der Experimente auf die Anregungsfunktion geschlossen werden kann. Aus diesen Gründen gibt es bisher nur wenige Arbeiten zur Bestimmung von Anregungsfunktionen Neutronen-induzierter Reaktionen für hochenergetische Projektilenergien [NA92, SC92A, KI97], die bei weitem nicht die gesamte mögliche Produkt- und Energiepalette umfassen. Weitere Arbeiten sind hier unbedingt vonnöten.

### 1.3 Anwendungsgebiete für Anregungsfunktionen

Es gibt eine Vielzahl von Anwendungen, bei denen radioaktive und stabile Nuklide durch Kernreaktionen hochenergetischer Protonen und teilweise überwiegend durch Neutronen gebildet werden, und für die die Kenntnis von Anregungsfunktionen der zugrundeliegenden Reaktionen nötig ist. Eine Übersicht dazu gibt Tabelle 1.1.

Tabelle 1.1 Anwendungsgebiete für den Gebrauch von Anregungsfunktionen.

Kernphysik	Systematik von Kernreaktionen [MI97]
Beschleunigertechnologie	Aktivierung von Detektoren, Strahlenschutz [DU91]
Dosimetrie	gemischte Nukleonenfelder
Medizin	Radionuklidproduktion, Strahlentherapie und -diagnostik [AN97]
Raumfahrttechnologie	Strahlenschutz, Materialschäden [FI92]
Geophysik	kosmogene Nuklide als Tracer in Archeometrie und Glaziologie [FI93]
Planetologie	„Remote sensing“ planetarer Oberflächen
Beschleuniger-getriebene Systeme	„Accelerator-based waste transmutation“ [BO92] und „Accelerator-based energy amplification“ [CA93]

Zur Behandlung von Krebs werden von vielen Therapiezentren Neutronenstrahlen hohen linearen Energietransfers mit Energien bis zu 70 MeV eingesetzt. Neben der gewünschten destruktiven Wirkung auf den Tumor entstehen dabei aber auch durch Kernreaktionen an den Targetelementen Kohlenstoff, Stickstoff und Sauerstoff des Gewebes radioaktive Nuklide, dessen Strahlung das gesunde Gewebe schädigt - ein unerwünschter Effekt. Zur genauen Dosisabschätzung bei solchen Bestrahlungen sind Produktionswirkungsquerschnitte für Neutronen-induzierte Reaktionen an den genannten Elementen unabdingbar [AN97].

Nuklearer Abfall - beispielsweise aus Kernkraftwerken - enthält große Mengen an Plutonium, spaltbaren Aktiniden und langlebigen Spaltprodukten. Für diese besteht das Problem der langfristigen Lagerung. Ein Vorschlag zur Verbrennung solcher Abfälle ist die accelerator-based waste transmutation (ATW) [BO92]. Bei dieser sollen die Spaltprodukte durch (n, $\gamma$ )-Reaktionen in kurzlebige und stabile Produkte

umgewandelt werden. Ein Spallationstarget liefert dafür die Neutronen, die durch Kernreaktionen hochenergetischer Protonen von 0.8-1.6 GeV mit schweren Kernen - wie zum Beispiel Blei - freigesetzt werden. Um ein solches Konzept entwickeln zu können, ist die genaue Kenntnis der Anregungsfunktionen der während des Betriebes der Anlage stattfindenden zahlreichen Kernreaktionen notwendig. Aus diesem Grund wird beispielsweise an der Messung der Anregungsfunktion der Reaktion  $^{208}\text{Pb}(n,p)^{208}\text{Tl}$  gearbeitet, die für den Strahlenschutz relevant ist, da das kurzlebige  $^{208}\text{Tl}$  unter Aussendung eines hochenergetischen 2615 keV  $\gamma$ -Quants zerfällt.

Schließlich soll im folgenden auf die Produktion kosmogener Nuklide ausführlich eingegangen werden, da dieses Thema einen Hauptteil dieser Arbeit bildet. Diese durch die kosmische Strahlung produzierten Restkerne werden in der Erdatmosphäre, terrestrischem Oberflächengestein, kosmischem Staub, lunarem Gestein und Meteoroiden produziert. Letztere zwei Targets werden in dieser Arbeit behandelt.

### 1.3.1 Meteoroiden als Targets der kosmischen Strahlung

Die meisten Meteoroiden werden bei Kollisionsereignissen aus ihrem Mutterkörper im Asteroidengürtel zwischen Mars und Jupiter freigesetzt. Entsprechend der einzelnen Mutterkörper sind die Meteoroiden unterschiedlich zusammengesetzt und werden mit Hilfe ihres in metallischer Form vorliegenden Eisengehaltes in drei Hauptgruppen unterschieden: Eisen-, Steineisen- und Steinmeteorite<sup>1</sup>. Weitere Klassifizierungen erfolgen durch chemische und petrologische Kriterien, so daß eine ganze Reihe von Untergruppen entstehen, die hier nicht alle behandelt werden können [WA74A].

Steinmeteorite werden in Achondrite, die als differenzierte Meteorite durch Schmelzprozesse aus einem primären, primitiven Material hervorgegangen sind, und in Chondrite als undifferenzierte Meteorite gegliedert. Diese enthalten zu 40-80 % die wenige Millimeter großen, kugelförmigen Chondren, die zeigen, daß Chondrite 'Urmaterie' darstellen, die nie als Ganzes geschmolzen wurde. Mehr als 80 % der Meteoritenfälle sind Chondrite. 84 % davon, die gewöhnlichen Chondrite, werden gemäß dem Eisengehalt als H- (H für hohes Gesamteisen), L- (L für „low iron“ = niedriges Gesamteisen) und LL-Chondrite (low iron, „low metal“ = niedriges Gesamteisen und niedriger Metallgehalt) identifiziert, die darüber hinaus durch arabische Ziffern in ihrer Petrologie unterschieden werden [MA79].

Eisenmeteorite sind wie die Achondrite differenzierte Materie, die zu mehr als 90 % aus metallischem Nickeleisen besteht, neben geringen Beimengungen von Kobalt, Schwefel, Phosphor und Kohlenstoff. Die Unterscheidung erfolgt in die überwiegende Mehrzahl der Oktaedrite und die selteneren Hexaedrite. Die Namensgebung erfolgt bei den Oktaedriten nach den nach Oktaederflächen orientierten Lamellensystemen, die durch Anätzen auf polierten Anschnitt deutlich sichtbar gemacht werden. Hexaedrite dagegen zeigen Spaltbarkeit nach dem Würfel (Hexaeder). Steineisenmeteorite sind eine Mischung aus Silikatgestein und Nickeleisen.

Im Weltraum sind die Meteoroiden der kosmischen Strahlung ausgesetzt, die aus hochenergetischen Teilchen besteht und durch Kernreaktionen mit den Targetkernen des Meteoroiden Restkerne erzeugt, die kosmogener Nuklide. Werden die Meteoroiden auf einer erdkreuzenden Bahn von der Erde eingefangen und erfolgt der Fall auf die Erde, so passiert dabei eine zumeist erhebliche Veränderung der Geometrie des Meteoroiden durch Ablation und Aufbruch. Die in den gefallenen Bruchstücken gemessenen Aktivitäten dieser kosmogener Nuklide enthalten zahlreiche Informationen: So kann aus ihnen auf die präatmosphärische Geometrie und die Abschirmtiefen der Fundstücke im Meteoroiden zurückgeschlossen werden; es kann das Expositionsalter bestimmt werden, während dem der Meteoroid der kosmischen Strahlung ausgesetzt war, das - zeigen die einzelnen Meteoritenklassen Cluster - Auskunft über die Erzeugung der Meteoroiden aus dem Mutterkörper gibt; außerdem kann Information über die spektrale Flußdichte der sie erzeugenden Strahlung sowie deren Intensität und zeitliche Konstanz extrahiert werden.

---

<sup>1</sup> Für den Zeitraum zwischen Erzeugung und Fall auf die Erde verwendet man den Begriff *Meteoroid*, nach dem Fall jedoch wird der Begriff *Meteorit* benutzt.

Zur korrekten Interpretation der angegebenen Größen müssen Modellrechnungen durchgeführt werden, die die Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit den Meteoroiden simulieren und die auf die Anregungsfunktionen zur Produktion der kosmogenen Nuklide zurückgreifen. Neben der genauen Kenntnis dieser nuklearen Daten wird für die Simulation auch eine eindeutige physikalische Beschreibung der kosmischen Strahlung benötigt. Man unterteilt die kosmische Strahlung nach ihrer Entstehung in zwei Komponenten: in die galaktische kosmische Strahlung, die ihren Ursprung außerhalb des Sonnensystems vorwiegend in Supernovaexplosionen [CE95, BI97] hat, und in die solare kosmische Strahlung, die von der Sonne emittiert wird.

### 1.3.2 Die galaktische kosmische Strahlung

Die galaktische Komponente (GCR für „Galactic Cosmic Ray“) der kosmischen Strahlung setzt sich zu 87 % aus Protonen, 12 %  $\alpha$ -Teilchen und 1 % schwereren Teilchen zusammen [AL72]. Die Beschleunigung der Teilchen auf maximal bis zu  $10^{21}$  eV [SU71] erfolgt durch interstellare Magnetfelder nach einem von Fermi [FE49] vorgeschlagenen Mechanismus. Dringen die Teilchen in den Bereich der Heliosphäre ein, der sich bis zu 100 A.U.<sup>2</sup> erstrecken soll [BE90], werden sie durch das interplanetare Magnetfeld der Sonne moduliert. Das bedeutet, daß das Spektrum der GCR entsprechend der Sonnenaktivität vorwiegend für die niedrigeren Energien verändert wird.

Die spektrale Flußdichte der Teilchen für Massenzahlen mit  $A \leq 4$  im Abstand einer A.U. von der Erde weist ein breites Maximum zwischen 0.1 GeV/A und 1 GeV/A auf und fällt für Energien oberhalb einiger GeV nach einem Potenzansatz entsprechend  $(E/A)^\gamma$  mit  $\gamma = 2.5-2.7$  [SI83] ab. Castagnoli und Lal [CA80] beschreiben die spektrale Protonenflußdichte  $\phi_E$  im Abstand einer A.U. basierend auf physikalischen Überlegungen [UR72, GA75] folgendermaßen:

$$\phi_E(E_p, M) = 1.24 \cdot 10^6 \cdot \frac{E_p(E_p + 2m_p c^2)(E_p + m + M)^{-2.65}}{(E_p + M)(E_p + 2m_p c^2 + M)} [cm^{-2} s^{-1} MeV^{-1}] \quad \text{mit} \quad m = 780 \cdot e^{-2.5 \cdot 10^{-4} E_p} \quad (1.2)$$

Dabei ist  $E_p$  die kinetische Energie der Protonen in [MeV],  $m_p$  die Ruhemasse des Protons in [MeV/c<sup>2</sup>],  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $M$  der Modulationsparameter in [MeV];  $M$  gibt die Energie an, die ein Proton beim Durchqueren der Heliosphäre bis zum Erreichen der Erde verliert.  $\alpha$ -Teilchen weisen ähnliche Spektrenformen auf, betrachtet man sie in MeV/Nukleon.

Gleichung (1.2) parametrisiert das GCR-Spektrum mit nur einem freien Parameter, dem Modulationsparameter  $M$ . Castagnoli und Lal [CA80] zeigten, daß große Modulationsparameter ( $M = 900$  MeV) typisch für eine aktive Sonne sind, kleine ( $M = 450$  MeV) dagegen eine geringe Sonnenaktivität charakterisieren. Anhand der spektralen Flußdichten verschiedener Modulationsparameter (Abbildung 1.3) sieht man, daß die Modulation innerhalb der Heliosphäre insbesondere die Intensität für Energien unterhalb weniger GeV beeinflusst und so die mittleren Energien der Spektren mit  $M$  zunehmen, die Flußdichten jedoch abnehmen. Ein typischer Wert der Protonen für  $M = 620$  MeV ist  $\phi(E > 10 \text{ MeV}) = 2.62 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Das Ansteigen der GCR-Flußdichte mit wachsendem Abstand von der Sonne wurde durch die Pioneer 10 und 11 Missionen ausgemessen und beträgt 2 % bis 3 % pro A.U. [MK87].

### 1.3.3 Die solare kosmische Strahlung

Die solare kosmische Strahlung (SCR für „Solar Cosmic Ray“) besteht hauptsächlich aus Protonen und  $\alpha$ -Teilchen, die bei solaren Ausbrüchen emittiert werden, den sogenannten „flares“ [ST80, CU91]. Bei diesen, auf der Sonne räumlich begrenzten Ereignissen, deren Ursache in vorausgehenden räumlichen und zeitlichen Turbulenzen des Magnetfeldes liegt, wird innerhalb weniger Stunden bis Tagen sehr viel elektromagnetische Strahlung und Teilchenstrahlung freigesetzt. Dabei variiert die chemische Zu-

<sup>2</sup> Eine Astronomische Einheit (1 A.U.) ist der mittlere Abstand zwischen Erde und Sonne (149 597 870 km).

sammensetzung der Teilchenstrahlung der SCR von flare zu flare [FR63, BI63] und ändert sich selbst während eines flares, wobei das He/H-Verhältnis zu 0.001 bis 0.04 [LA73, HS70, GO88] mit einem mittleren Wert von etwa 0.02 gemessen wurde. Die Fluenzen der Protonen mit Energien größer als 10 MeV reichen für einen flare von unterhalb  $10^5$  bis zu oberhalb von  $10^{10}$   $\text{cm}^{-2}$  [RE77, LA72]. Die spektrale Flußdichte  $\varphi_E$  der SCR weist eine rapide Abnahme mit der Energie der Protonen auf (Abbildung 1.3), und kann durch ein exponentiell abfallendes Rigiditätsspektrum [RE72A] der Form

$$\varphi_E(R) dR \propto e^{-R/R_0} dR \tag{1.3}$$

beschrieben werden. Dabei ist  $R = pc/Ze$  die magnetische Steifigkeit („Rigidity“) des Spektrums, wobei  $p$  den Viererimpuls des Teilchens der Ladungszahl  $Z$ ,  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $e$  die elektrische Ladung des Elektrons darstellt.  $R_0$  ist die das Spektrum bestimmende, charakteristische Rigidity.

Die Rigidity beschreibt die Härte des Spektrums, für das niedrige Rigidities eine größere Intensität im *niederenergetischen* Bereich, hohe Rigidities jedoch im *hochenergetischen* Bereich höhere Flußdichten bewirken. Zur vollständigen Charakterisierung des Spektrums muß noch ein zweiter Parameter, die omnidirektionale Flußdichte  $J_0$  für Protonen mit Energien größer als 10 MeV angegeben werden:

$$J_0(E > 10 \text{ MeV}) = \int_{10 \text{ MeV}}^{\infty} \varphi_E(E) dE \tag{1.4}$$

Die SCR-Spektren werden seit dreißig Jahren gemessen und lieferten charakteristische Rigidities für die einzelnen Flares zwischen 20 und 150 MeV. Demgegenüber ist ein Rückschluß für den Zeitraum der letzten zehn Millionen Jahre nur indirekt über kosmogene Nuklide möglich. Entsprechend ihrer niedrigen Energien -  $E \leq 200 \text{ MeV}$  im Vergleich zu etwa 2-4 GeV mittlerer Energie der GCR-Protonen - werden die Protonen der SCR schon in den obersten, wenige Zentimeter dicken Materieschichten abgebremst, produzieren in ihnen jedoch kosmogene Nuklide mit einem Produktionsratentiefenprofil, dessen Signatur die Härte des einfallenden Spektrums speichert. Aus derartigen Tiefenprofilen in lunarem Gestein oder in Meteoriten lassen sich deshalb Rückschlüsse auf das langzeitgemittelte SCR-Spektrum ziehen.

Die Frage nach dem langzeitgemittelten Spektrum und nach dem Parametersatz  $(R_0, J_0)$  über die letzten zehn Millionen Jahre ist eine sehr wichtige in der Kosmochemie. Trotzdem herrscht in der Literatur darüber keine Klarheit. In Abbildung 1.3 sind beispielsweise zwei gegensätzliche, in der Literatur zu findende Parametersätze gezeigt, die ein weiches ( $R_0 = 85 \text{ MV}$  [RA94]) beziehungsweise ein hartes ( $R_0 = 125 \text{ MV}$  [BO93, MI96A]) Spektrum angeben.

Grundvoraussetzung für eine genaue Extraktion eines SCR-Spektrums sind wiederum Modellrechnungen, die die gemessenen Profile simulieren, indem einerseits eine exakte Modellierung des GCR-Anteiles vorgenommen wird und zum anderen für den SCR-Beitrag die im Körper durch Bremsrechnungen berechneten spektralen Flußdichten der Protonen mit den Anregungsfunktionen der Protonen-induzierten Reaktionen gefaltet werden. Die Güte der Rechnungen wird dabei entscheidend durch die Qualität der in sie eingehenden nuklearen Daten bestimmt.

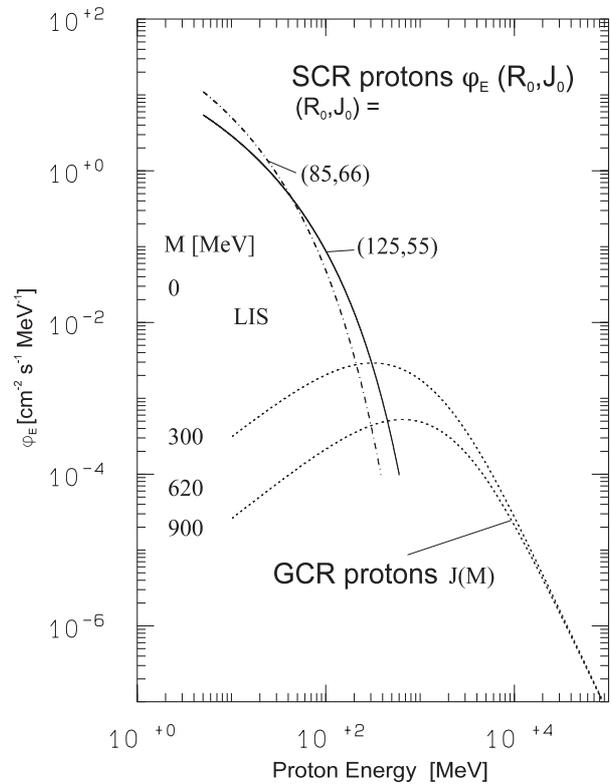


Abbildung 1.3 Spektrale Flußdichten  $\varphi_E$  galaktischer Protonen (GCR) in 1 A.U. Sonnenabstand sowie  $\varphi_E$  solarer Protonen (SCR). LIS beschreibt das lokale interstellare Spektrum entsprechend  $M = 0 \text{ MeV}$ .

## 2 Aufgabenstellung

Integrale Wirkungsquerschnitte für die Produktion von Restkernen in Protonen- und Neutronen-induzierten Reaktionen an einem großen Teil der Elemente des Periodensystems bilden eine unverzichtbare Datenbasis für viele Anwendungen, insbesondere für die Produktion kosmogener Nuklide in terrestrischer und extraterrestrischer Materie. Im Falle der Protonen-induzierten Daten sind durch unsere Arbeitsgruppe die Experimentiertechniken sowie die Meß- und Auswertemethode zur Bestimmung derselben etabliert, so daß eine Vielfalt vollständiger Anregungsfunktionen für Protonenenergien von den Schwellenenergien bis hin zu 2.6 GeV vorliegen.

Dagegen liegen bisher kaum experimentelle Wirkungsquerschnitte für die Neutronen-induzierte Produktion von Restkernen vor. Dies liegt darin begründet, daß Experimente zur Messung der Anregungsfunktionen der Neutronen-induzierten Reaktionen sowohl in der Durchführung als auch in der Auswertung erheblich komplexer sind. Denn die im Vergleich zu Protonenbestrahlungen niedrigen Neutronenflußdichten erschweren die Erzeugung leicht nachweisbarer Aktivitäten und die Bestrahlung mit quasimonoenergetischen Neutronen bewirkt, daß Ergebnisse nur aus einer Reihe von Bestrahlungen gewonnen werden können.

Um den Mangel an experimentellen Daten zur Neutronen-induzierten Produktion von Restkernen zu beheben, soll in dieser Arbeit die Machbarkeit der Durchführung von Aktivierungsexperimenten an der Neutronenbeamline des The Svedberg Laboratoriums, Uppsala (Schweden), für Neutronenenergien bis zu 180 MeV untersucht werden. Die dazu nötigen Experimente sollen konzipiert, durchgeführt und in Hinblick auf die dabei erzeugten Restkernverteilungen ausgewertet werden.

Der Nachweis und die quantitative Bestimmung der Aktivitäten einer möglichst breiten Palette von Restkernen in den niedrig aktivierten Targets soll mit  $\gamma$ -Spektrometrie im Rahmen der am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie zur Verfügung stehenden experimentellen Möglichkeiten vorgenommen werden. Die speziellen Methoden für die Messung und Auswertung der im Vergleich zu den hochaktiven Targets der Protonenbestrahlungen niedrig aktivierten Proben sollen entwickelt werden. Diese Untersuchungen sollen später durch die Messung langlebiger Produkte mit Beschleuniger-Massenspektrometrie an der ETH Zürich (Schweiz) in Kollaboration mit der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln ergänzt werden.

Auch für einzelne Protonen-induzierte Reaktionen sind die Anregungsfunktionen noch unvollständig oder teilweise in sich widersprüchlich, vor allem für experimentell aufwendig nachzuweisende Nuklide. Für ausgewählte kosmophysikalisch interessante Restkerne sollen diese Mängel in den Anregungsfunktionen durch Messungen von durch die angesprochenen Protonenbestrahlungen bereitgestellten Aktivierungstargets behoben werden. Insbesondere soll die Produktion der langlebigen und stabilen Krypton-Isotope aus Rubidium, Strontium, Yttrium und Zirkon in Zusammenarbeit mit dem Centre d'Etudes Nucléaires Bordeaux, Bordeaux (Frankreich), bearbeitet werden. Diese Wirkungsquerschnittsmessungen sollen mit Hilfe der Modellierung von Dicktargetproduktionsraten zur Erstellung validierter Sätze von Anregungsfunktionen zur Protonen- und Neutronen-induzierten Erzeugung dienen.

Mit diesen und bereits vorliegenden validierten Anregungsfunktionen sollen Modellrechnungen zur Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie durch die galaktische kosmische Strahlung durchgeführt werden. Mit diesen Simulationen sollen experimentelle Produktionsraten kosmogener Nuklide in Meteoriten im Rahmen aktueller Fragestellungen interpretiert werden. Des weiteren soll mit Modellrechnungen für die Erzeugung kosmogener Nuklide durch die solare kosmische Strahlung in lunaren Gesteinen die Frage nach dem langzeitgemittelten Spektrum der solaren kosmischen Strahlung behandelt werden.

### 3 Theoretische Grundlagen zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten

Infolge der fehlenden Ladung der Neutronen unterscheidet sich die Verteilung der Energien der Projektile bei Protonen- und Neutronenbestrahlungen grundsätzlich. Während man Protonen mit hoher Genauigkeit auf die gewünschte Energie beschleunigt, werden Neutronen in dem in dieser Arbeit betrachteten Energiebereich von  $\sim 20 - 200$  MeV nur mit einer *nicht* monoenergetischen spektralen Flußdichte erzeugt. Diese unterschiedlichen Bestrahlungsbedingungen erfordern jeweils eigene mathematische Grundlagen zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte der induzierten Reaktionen. Die in dieser Arbeit zur Auswertung der Experimente angewendeten werden im folgenden vorgestellt.

#### 3.1 Bestimmung von Wirkungsquerschnitten Protonen-induzierter Reaktionen

Als geladene Teilchen werden Protonen im Beschleuniger auf die für das Experiment benötigte Anfangsenergie beschleunigt. Bei der in dieser Arbeit verwendeten, bekannten „stacked-foil-technique“ durchdringen sie gleich einen Stapel („stack“) von Targetfolien. Dabei werden durch die Abbremsung der Protonen im Stack mit *einem* Experiment Wirkungsquerschnitte bei *mehreren* Protonenenergien bestimmt. Die folgende theoretische Betrachtung muß daher neben der eigentlichen Berechnung des Wirkungsquerschnittes aus der mittels eines Meßverfahrens bestimmten Größe für die Anzahl eines erzeugten Restkernes auch die Bremsung der Protonen im Stack behandeln. In Vorwegnahme des nächsten Kapitels soll hier bereits erwähnt werden, daß der Nachweis der Restkerne in dieser Arbeit mit Hilfe der  $\gamma$ -Spektrometrie erfolgte, mithin nur radioaktive Restkerne zugänglich waren.

##### 3.1.1 Berechnung von Wirkungsquerschnitten und Flußdichtebestimmung

Bestrahlt man eine Probe eines Materials bestehend aus  $N_T$  Kernen der Art T, so ist der zeitliche Zuwachs der erzeugten  $N_B$  Kerne B proportional zur Flußdichte  $\phi$  der einfallenden Teilchen p und zur Anzahl der Targetkerne. Zusätzlich muß der radioaktive Zerfall der Produktkerne berücksichtigt werden. Mit  $\lambda_B$  als Zerfallskonstante und  $T_{B,1/2}$  als Halbwertszeit des Produktnuklides B - es gilt  $\lambda_B = \ln 2 / T_{B,1/2}$  - wird die zeitliche Veränderung der Anzahl der Produktkerne durch die Differentialgleichung

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \phi N_T - \lambda_B N_B \quad (3.1)$$

beschrieben. Der hier eingeführte Proportionalitätsfaktor  $\sigma$  ist der Wirkungsquerschnitt und beschreibt das Maß für die Wahrscheinlichkeit einer Kernreaktion  $T(p,X)B$  bei der betrachteten Energie  $E_p$ ; er wird in der Regel in Millibarn (mb) ( $1 \text{ mb} = 10^{-27} \text{ cm}^2$ ) angegeben. Die Gesamtheit der Wirkungsquerschnitte für die Produktion eines Nuklides B als Funktion der Projektilenergie  $E_p$ ,  $\sigma = \sigma(E_p)$ , bildet die sogenannte Anregungsfunktion.

Die Integration von Gleichung (3.1) mit der Anfangsbedingung  $N_B(t=0) = 0$  und unter der Annahme, daß sich  $N_T$  durch die Bestrahlung nicht wesentlich ändert, ergibt die bekannte Aktivierungsgleichung:

$$N_B(t) = \frac{\sigma \phi N_T}{\lambda_B} (1 - e^{-\lambda_B t}), \quad t_{BoI} < t < t_{EoI} \quad (3.2)$$

Dabei kennzeichnen **BoI** („Begin of Irradiation“) und **EoI** („End of Irradiation“) den Beginn und das Ende der Bestrahlung. Ebenso wird im folgenden der Anfang **BoC** („Begin of Counting“) und das Ende **EoC** („End of Counting“) der  $\gamma$ -spektrometrischen Messung abgekürzt.

Die Aktivität der radioaktiven Restkerne wird erst nach der Zeit  $t_{\text{BoC}} - t_{\text{EoI}}$   $\gamma$ -spektrometrisch bestimmt. Zu diesem Zeitpunkt hat die am Ende der Bestrahlung vorhandene Aktivität  $A_B(t_{\text{EoI}}) = \lambda_B N_B(t_{\text{EoI}})$  gemäß des Zerfallsgesetzes um den Faktor  $\exp\{-\lambda_B \cdot (t_{\text{BoC}} - t_{\text{EoI}})\}$  abgenommen. Die Messung integriert dann die Aktivität  $A_B(t)$  über den Meßzeitraum  $t_M = t_{\text{EoC}} - t_{\text{BoC}}$  auf und die vom Detektor innerhalb von  $t_M$  registrierte Anzahl von  $\gamma$ -Quanten einer Energie, die sogenannte Nettopeakfläche NP, ergibt sich somit zu:

$$NP = I_\gamma \epsilon_\gamma A_B(t_{\text{EoI}}) e^{-\lambda_B(t_{\text{BoC}} - t_{\text{EoI}})} \int_{t_{\text{BoC}}}^{t_{\text{EoC}}} e^{-\lambda_B(t - t_{\text{BoC}})} dt = I_\gamma \epsilon_\gamma A_B(t_{\text{BoC}}) \int_{t_{\text{BoC}}}^{t_{\text{EoC}}} e^{-\lambda_B(t - t_{\text{BoC}})} dt \quad (3.3)$$

Hierbei wurden die Entkommwahrscheinlichkeit  $I_\gamma$  der betrachteten  $\gamma$ -Linie und das Ansprechvermögen  $\epsilon_\gamma$  des Detektors berücksichtigt. Die Integration liefert:

$$A_B(t_{\text{BoC}}) = \frac{NP \lambda_B}{I_\gamma \epsilon_\gamma (1 - e^{-\lambda_B(t_{\text{EoC}} - t_{\text{BoC}})})} \quad (3.4)$$

Zu bestimmen ist noch die Anzahl der Kerne  $N_T$  in einer bestrahlten Probe. Diese erhält man über die Avogadro-Konstante  $N_L$  und die Molmasse  $m_{T,\text{mol}}$  entweder mit Hilfe der Masse  $m_T$  der Probe oder über die Fläche  $F_T$ , die Dicke  $d_T$  sowie der Dichte  $\rho_T$  der Probe zu:

$$N_A = N_L \frac{m_T}{m_{T,\text{mol}}} = N_L \frac{\rho_T d_T F_T}{m_{T,\text{mol}}} \quad (3.5)$$

Fügt man die Gleichungen (3.2), (3.3) und (3.4) zusammen, folgt daraus der Wirkungsquerschnitt  $\sigma$ :

$$\sigma = \frac{NP \lambda_B}{I_\gamma \epsilon_\gamma \varphi N_T (1 - e^{-\lambda_B(t_{\text{EoI}} - t_{\text{BoI}})}) (1 - e^{-\lambda_B(t_{\text{EoC}} - t_{\text{BoC}})})} e^{\lambda_B(t_{\text{BoC}} - t_{\text{EoI}})} \quad (3.6)$$

In diese Gleichung geht auch die Flußdichte  $\varphi$  der einfallenden Protonen ein, die auf zwei Arten gemessen wird. Zum einen ist dies direkt während der Bestrahlung mit einem Faraday-Cup möglich. Diese Technik stand jedoch für die für diese Arbeit durchgeführten Bestrahlungen nicht zur Verfügung. Daher wurde die zweite gängige Methode benutzt: die Berechnung über sogenannte Monitorreaktionen. Für diese Reaktionen sind die durch sie erzeugten Restkerne besonders gut zu messen [CU63] und die zugehörigen Anregungsfunktionen über den im Experiment betrachteten Energiebereich bereits gut bekannt. Daher wird in Gleichung (3.6) umgekehrt die unbekannte Flußdichte durch Einsetzen des zugehörigen Monitorwirkungsquerschnittes bestimmt.

### 3.1.2 Unabhängige und kumulative Wirkungsquerschnitte

Der in Gleichung (3.6) angegebene Wirkungsquerschnitt wurde bisher der Produktion der direkt zum Produkt führenden Reaktion  $T(p,X)B$  zugeordnet. Tatsächlich muß jedoch berücksichtigt werden, daß möglicherweise während der Bestrahlung weitere Nuklide auf einer Isobaren produziert werden können. Dies führt dazu, daß diese durch  $\beta$ -Zerfall in das untersuchte Nuklid zerfallen und ebenfalls zu dessen Produktion beitragen. Daher unterscheidet man unabhängige und kumulative Wirkungsquerschnitte.

Unabhängige Wirkungsquerschnitte beinhalten *nur* die Produktion für das betrachtete Nuklid, das von stabilen oder langlebigen Nukliden gegen  $\beta$ -zerfallende Nuklide abgeschirmt sein kann oder für das die Produktion des Progenitors ebenfalls gemessen und geeignet von der des Produktnuklides separiert wurde. Kumulative Wirkungsquerschnitte beinhalten dagegen die Produktion von B mit allen in B zerfallenen Progenitoren, die bei der Messung häufig nicht mehr zugänglich sind - zumeist wegen ihrer kurzen Halbwertszeiten.

Betrachten wir ein Paar, für das der Progenitor die mit  $\sigma_M$  produzierte Mutter M sei, die mit Zerfallskonstante  $\lambda_M$  zur Produktion der Tochter D beiträgt, die ihrerseits mit dem Querschnitt  $\sigma_{D,\text{ind}}$  direkt produziert wird und mit  $\lambda_D$  zerfällt. Dann wird für die Zeit *während* der Bestrahlung Gleichung (3.1) durch das gekoppelte Differentialgleichungssystem

$$\frac{dN_M}{dt} = \sigma_M \varphi N_T - \lambda_M N_M \text{ und } \frac{dN_D}{dt} = \sigma_{D,ind} \varphi N_T - \lambda_D N_D + \lambda_M N_M, \quad t \leq t_{EOI} \quad (3.7)$$

ersetzt, dessen Lösung die modifizierte Aktivierungsgleichung für die Tochter ergibt:

$$N_D(t) = \varphi N_T \left( \sigma_{D,ind} \frac{1 - e^{-\lambda_D t}}{\lambda_D} + \sigma_M \left( \frac{1 - e^{-\lambda_D t}}{\lambda_D} + \frac{e^{-\lambda_M t} - e^{-\lambda_D t}}{\lambda_M - \lambda_D} \right) \right), \quad t \leq t_{EOI} \quad (3.8)$$

Nach dem Ende der Bestrahlung erfolgt der Zerfall des Tochternuklides nicht mehr exponentiell, sondern er muß nach dem Differentialgleichungssystem

$$\frac{dN_M}{dt} = -\lambda_M N_M \text{ und } \frac{dN_D}{dt} = -\lambda_D N_D + \lambda_M N_M, \quad t \geq t_{EOI} \quad (3.9)$$

berechnet werden, womit man als Lösung erhält:

$$N_D(t) = \varphi N_T \left( \left( \sigma_{D,ind} + \sigma_M \frac{\lambda_M}{\lambda_M - \lambda_D} \right) \frac{1 - e^{-\lambda_D t_{irr}}}{\lambda_D} e^{-\lambda_D t} + \sigma_M \frac{1 - e^{-\lambda_M t_{irr}}}{\lambda_D - \lambda_M} e^{-\lambda_M t} \right), \quad t \geq t_{EOI} \quad (3.10)$$

Ist die Tochter langlebig gegenüber der Mutter ( $\lambda_D \ll \lambda_M$ ) und erfolgt die Messung des Tochternuklids, wenn das Mutternuklid fast völlig zerfallen ist, so kann der zweite Summand in Gleichung (3.10) wegen  $\exp\{-\lambda_M(t_{BOC} - t_{EOI})\} \rightarrow 0$  vernachlässigt werden. Dann bekommt man den kumulativen Wirkungsquerschnitt der Tochter  $\sigma_{D,cum}$  durch Vergleich mit Gleichung (3.2) zu

$$\sigma_{D,cum} = \sigma_{D,ind} + \sigma_M \frac{\lambda_M}{\lambda_M - \lambda_D}, \quad (3.11)$$

womit sich leicht der unabhängige Wirkungsquerschnitt der Tochter berechnen läßt.

Liegen die Halbwertszeiten der Mutter und der Tochter in der gleichen Größenordnung, wie zum Beispiel im Falle des  $^{200}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 21.5$  h), das in  $^{200}\text{Tl}$  ( $T_{1/2} = 26.1$  h) zerfällt, kann die Berechnung nicht mehr gemäß der obigen Näherung erfolgen. Vielmehr werden nach den Gleichungen in Kapitel 3.1.1 zunächst falsche Aktivitäten für das Ende der Bestrahlung  $A_D^*$  berechnet. Mit der Kenntnis der Aktivität der Mutter zum Zeitpunkt  $t_{EOI}$  läßt sich dann  $A_D(t_{EOI})$  nach

$$A_D(t_{EOI}) = A_D^*(t_{EOI}) + A_M(t_{EOI}) \frac{\lambda_D}{\lambda_D - \lambda_M} \left( 1 - \frac{\lambda_D}{\lambda_M} \frac{1 - e^{-\lambda_M t_c}}{1 - e^{-\lambda_D t_c}} e^{-(\lambda_M - \lambda_D)(t_{BOC} - t_{EOI})} \right) \quad (3.12)$$

berechnen. Zur Bestimmung des Wirkungsquerschnittes muß nun beachtet werden, ob die Halbwertszeiten der Nuklide groß gegenüber der Bestrahlungsdauer sind. In diesem Falle wird  $\sigma_{D,ind}$  durch Einsetzen von (3.12) in (3.6) erhalten. Ist diese Voraussetzung nicht mehr erfüllt, muß der Zerfall der Mutter in die Tochter während der Bestrahlung berücksichtigt werden, so daß sich dann der unabhängige Wirkungsquerschnitt der Tochter wie folgt berechnen läßt:

$$\sigma_{D,ind} = \frac{A_D(t_{EOI})}{\varphi N_T (1 - e^{-\lambda_D t_{irr}})} - \sigma_M \left( 1 - \frac{\lambda_D}{\lambda_D - \lambda_M} \left( 1 - \frac{1 - e^{-\lambda_M t_{irr}}}{1 - e^{-\lambda_D t_{irr}}} \right) \right) \quad (3.13)$$

### 3.1.3 Berücksichtigung von $\gamma$ -Interferenzen

Haben zwei Nuklide 1 und 2  $\gamma$ -Linien bei derselben Energie oder unterscheiden sich diese Linien so wenig, daß sie vom Detektor nicht mehr als zwei aufgelöst werden, so ist die Nettopeakfläche NP durch die Summe der Beiträge beider Nuklide als  $NP = NP_1 + NP_2$  gegeben. Erfolgt jedoch die Bestimmung der Aktivität von Nuklid 2 durch Auswertung einer nicht überlagerten Linie oder zu einem Zeitpunkt, zu

dem das andere Nuklid zerfallen ist, so läßt sich eine Trennung beider Linien vornehmen. Da mit  $NP_1$  am Ende der Bestrahlung eine falsche Aktivität  $A_1^*(t_{EOI})$  berechnet wird, wird diese mit der bekannten Aktivität  $A_2(t_{EOI})$  zur richtigen Aktivität  $A_1(t_{EOI})$  korrigiert:

$$A_1(t_{EOI}) = A_1^*(t_{EOI}) - A_2(t_{EOI}) \frac{\lambda_1 I_{\gamma_1} \frac{1 - e^{-\lambda_2 t_c}}{\lambda_2 I_{\gamma_2} \frac{1 - e^{-\lambda_1 t_c}}{e^{(\lambda_1 - \lambda_2)(t_{BOC} - t_{EOI})}}}}{\lambda_2 I_{\gamma_2} \frac{1 - e^{-\lambda_1 t_c}}{e^{(\lambda_1 - \lambda_2)(t_{BOC} - t_{EOI})}}}} \quad (3.14)$$

### 3.1.4 Bremsung geladener Teilchen in Materie

Die Bremsung geladener Projektile der Ladungszahl  $Z_p$  in einem Target mit Atommasse  $A_T$ , Ladungszahl  $Z_T$  und Dichte  $\rho$  wird durch das Bremsvermögen  $dE/dx$  ausgedrückt, das für Projektilenergien größer als 1 MeV/amu mit der von Bethe [BE30, BE32] und Bloch [BL33] abgeleiteten Gleichung berechnet wird. Diese zieht den Energieverlust durch Ionisation und Anregung der Hüllenelektronen des Absorbers in Betracht. Zusätzlich müssen der Polarisierungseffekt  $\Delta$  und Schalenkorrekturen  $C$  angebracht werden, die berücksichtigen, daß weiter entfernte Elektronen durch die Polarisierung der Materie beziehungsweise die Elektronen der inneren Schalen nicht zur Bremsung beitragen. Dann schreibt sich die BetheBloch-Gleichung folgendermaßen [FA63]:

$$-\frac{1}{\rho} \frac{dE}{dx} = -\frac{dE}{d\xi} = \frac{2\pi N_L Z_p^2 e^4 Z_T}{m_{el} c^2 \beta^2 A_T} \left( \ln \left[ \frac{2m_{el} c^2 W \beta^2}{I^2 (1 - \beta^2)} \right] - 2\beta^2 - 2\frac{C}{Z_T} - \Delta \right) \quad (3.15)$$

Dabei ist  $\beta = v/c$  der Quotient aus der Geschwindigkeit des Projektils  $v$  und der Lichtgeschwindigkeit  $c$ .  $W$  ist die maximale kinetische Energie, die von einem Proton an ein ungebundenes Elektron der Ruhemasse  $m_{el}$  in Ruhe übertragen werden kann, und  $I$  das angepaßte Ionisierungspotential.

Zur praktischen Durchführung der Bremsrechnungen entwickelten Andersen und Ziegler [AN77] eine parametrisierte Form der Bethe-Bloch-Gleichung mit insgesamt sieben Entwicklungskoeffizienten, die sie durch Fits der Ionisierungspotentiale und Schalenkorrekturen an experimentelle Daten extrahierten

$$\frac{dE}{Ndx} = \frac{A}{\beta^2} \left\{ \ln \left( B \frac{\beta^2}{1 - \beta^2} \right) - \beta^2 - \sum_{i=0}^4 a_i (\ln E)^i \right\}, \quad (3.16)$$

wobei  $N$  die Anzahl der Targetatome ist. Die Autoren geben einen Gültigkeitsbereich bis zu Projektilenergien von 100 MeV an. Vergleichsrechnungen mit erweiterten Ansätzen anderer Arbeiten [FI96, PR97A] zeigen jedoch die Möglichkeit einer Ausdehnung bis zu 1 GeV, so daß der Ansatz von Andersen und Ziegler [AN77] in dieser Arbeit auch für Energien bis 200 MeV verwendet wird.

Eine merkliche Abbremsung der Protonen tritt nur bei Vielfachprozessen auf. Die statistische Natur dieser Prozesse bewirkt eine ungleiche Abbremsung der Protonen. Die dadurch resultierende Energieverbreiterung des anfänglich als monoenergetisch angenommenen Protonenstrahles der Energie  $E$  ist als „energy straggling“ bekannt und wird durch eine Gaußverteilung [BO15] beschrieben, deren Breite durch den Straggling-Parameter  $\alpha$  gegeben ist:

$$\alpha^2 = 4\pi Z_p^2 e^4 N_L \frac{Z_T}{A_T} \xi \left[ 1 + \frac{4I}{3m_{el} c^2 \beta^2} \ln \left( \frac{2m_{el} c^2 \beta^2}{I} \right) \right] \quad (3.17)$$

Eine weitere Folge der statistischen Vorgänge beim Durchgang durch die Materie ist die Winkelverbreiterung des Strahles, die einen mittleren Divergenzwinkel  $\Theta^2$  bewirkt [MA69]:

$$\Theta^2 = \frac{2\pi Z_p^2 e^4}{E^2} N_L \frac{Z_T^2}{A_T} \xi \ln \left( \frac{E a_0}{Z_p Z_T^{4/3} e^2} \right) \quad \text{mit} \quad a_0 = \frac{h^2}{4\pi^2 m_{el} e^2} \quad (3.18)$$

## 3.2 Bestimmung von Wirkungsquerschnitten Neutronen-induzierter Reaktionen

Infolge ihrer fehlenden Ladung können Neutronen im Gegensatz zu Protonen nicht auf die gewünschten Energien beschleunigt werden. Daher wurden in dieser Arbeit zur Neutronenerzeugung auf die gut untersuchten (p,n)-Reaktionen  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  oder  ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$  zurückgegriffen, die jedoch nur ein quasimonoenergetisches Neutronenfeld (Abbildung 1.2) erzeugen. Dieses Strahlungsfeld wird durch die räumlichen Verteilungen der folgenden Größen beschrieben [DI80]:

- ◆ Die Teilchenflußdichte  $\varphi$  [ $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ] - die Anzahl der Teilchen  $d^2N$ , die in der Zeit  $dt$  in eine kleine Kugel mit der Querschnittsfläche  $dA$  eintreten:

$$d\varphi = \frac{d^2N}{dA dt} \quad (3.19)$$

- ◆ Die Teilchenfluenz  $\Phi$  [ $\text{cm}^{-2}$ ] - das Integral der Teilchenflußdichte  $\varphi$  über eine Zeitspanne  $t_1$  bis  $t_2$ :

$$\Phi = \int_{t_1}^{t_2} \varphi dt \quad (3.20)$$

- ◆ Die spektrale Teilchenflußdichte  $\varphi_E$  [ $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}\text{MeV}^{-1}$ ] - das ist die Verteilung der Teilchenflußdichte  $\varphi$  in Bezug auf die Energie  $E$  der Teilchen, die der Differentialquotient  $d\varphi(E)/dE$  ist. Dabei ist  $d\varphi(E)$  die Flußdichte aller Teilchen, deren Energie im infinitesimalen Energieintervall  $E$  und  $E+dE$  liegt und somit eine Funktion der Energie. Die Teilchenflußdichte ergibt sich aus dem Integral der spektralen Verteilung über alle Energien:

$$\varphi = \int_0^{\infty} \varphi_E dE \quad (3.21)$$

Im Falle einer quasimonoenergetischen spektralen Teilchenflußdichte (Abbildung 1.2) läßt sich zusätzlich die Peakfluenz

$$\Phi_{Peak} = \int_{t_1}^{t_2} dt \int_{E_2}^{\infty} \varphi_E dE \quad (3.22)$$

definieren, wobei die Energie  $E_2$  den Peak zu niedrigeren Energien hin begrenzt und für die jeweilige quasimonoenergetische spektrale Teilchenflußdichte festzulegen ist.

Mit den so definierten Größen läßt sich für den energieabhängigen Wirkungsquerschnitt  $\sigma(E)$  der spektren gemittelte Wirkungsquerschnitt

$$\bar{\sigma} = \frac{\int_{E_S}^{\infty} \sigma(E) \varphi_E dE}{\int_{E_S}^{\infty} \varphi_E dE} = \frac{R}{\int_{E_S}^{\infty} \varphi_E dE} \quad (3.23)$$

angeben, wobei  $E_S$  die Schwellenenergie<sup>1</sup> der Reaktion ist. Die Größe  $R$  [ $\text{s}^{-1}$ ] ist das Responseintegral der betrachteten Reaktion. Erweitert man die Differentialgleichung (3.1) für den Fall der Bestrahlung von Projektilen, die eine spektrale Teilchenflußdichte aufweisen, zu

$$\frac{dN_B}{dt} = N_T \int_{E_S}^{\infty} \sigma(E) \varphi_E dE - \lambda_B N_B = N_T R - \lambda_B N_B, \quad (3.24)$$

<sup>1</sup> Die Schwellenenergie  $E_S$  - die Energie, die nötig ist, um eine Kernreaktion  $T(p,X)B$  auszulösen - ergibt sich gemäß  $E_S = -Q(1+M_p/M_T)$  ( $M$ : Kernmasse in amu) mit dem  $Q$ -Wert  $Q = (M_T + M_p - M_X - M_B + (Z_T - Z_B)m_{el}) \cdot 931.5$  MeV als bei der Reaktion freiwerdende beziehungsweise aufzubringende Energie. Dabei wurden die Bindungsenergien der Hüllenelektronen nicht berücksichtigt.

wird der Zusammenhang des Responseintegrals mit der Erzeugung eines Nuklides bei einer Bestrahlung unmittelbar deutlich. Analog der Behandlung im Fall der Protonen in Kapitel 3.1.1, läßt sich R aus der  $\gamma$ -spektrometrischen Messung einer mit Neutronen bestrahlten Probe experimentell bestimmen:

$$R = \frac{NP \lambda_B}{I_\gamma \epsilon_\gamma N_T} \cdot \frac{e^{\lambda_B(t_{BoC} - t_{EoI})}}{(1 - e^{-\lambda_B(t_{EoI} - t_{BoI})}) (1 - e^{-\lambda_B(t_{EoC} - t_{BoC})})} \quad (3.25)$$

Das Responseintegral  $R^2$  speichert die Information über die mit der spektralen Flußdichte gemittelte Anregungsfunktion  $\sigma$  im Energiebereich  $[E_s, \infty]$ . Ziel eines Experimentes ist es jedoch, die Anregungsfunktion an M einzelnen Energiepunkten  $E_i$  zu bestimmen. Da die Anzahl dieser zur physikalisch sinnvollen Wiedergabe der Struktur einer Anregungsfunktion jedoch im allgemeinen sehr viel größer ist als die Anzahl N der mit verschiedenen quasimonoenergetischen spektralen Flußdichten durchgeführten Aktivierungsexperimente, steht man vor einem Entfaltungsproblem.

Da mit einem quasimonoenergetischen Spektrum bestrahlt wird, für das etwa 30-50% der Neutronen im hochenergetischen Peak knapp unterhalb der Protonenenergie liegen, beinhaltet das Responseintegral R die Wirkungsquerschnitte  $\sigma(E)$  nach Gleichung (3.23) im Energiebereich des Peaks stärker gewichtet als die  $\sigma(E)$  im niederenergetischen Bereich. Die energieabhängige Anpassung einer *a priori*-Anregungsfunktion für die Punkte  $E_i$  mit Entfaltung wird so möglich. Im Gegensatz dazu könnte man beispielsweise bei einer Bestrahlung mit einem 'weißen' Spektrum konstanter spektraler Flußdichte lediglich eine Absolutskalierung der Anregungsfunktion extrahieren.

Der in dieser Arbeit angewendete mathematische Formalismus zur Entfaltung der Anregungsfunktionen aus den bei den Aktivierungsexperimenten erzeugten Responseintegralen ist der des „Least-Squares-Adjustments“ (LSA). Dazu sei  $\mathbf{R}_{\text{exp}} = (R_{1,\text{exp}}, \dots, R_{N,\text{exp}})$  für ein bestimmtes Reaktionsprodukt der Vektor der aus N Bestrahlungen bestimmten Responseintegrale und

$$\Phi_E = \begin{pmatrix} \phi_{E1,1} & \dots & \phi_{E1,M} \\ \cdot & \dots & \cdot \\ \phi_{EN,1} & \dots & \phi_{EN,M} \end{pmatrix} \quad \text{mit} \quad \phi_{En,m} = \int_{E_{m-1}}^{E_m} \varphi_{En,m} dE \quad (3.26)$$

die Matrix der N Neutronenflußdichten in den M Energiegruppen.

$\mathbf{R}_{\text{exp}}$  als Ergebnis von Experimenten weist Unsicherheiten auf, die durch die Kovarianzmatrix  $\mathbf{K}_{\text{Rexp}}$  berücksichtigt werden. Die Elemente  $K_{i,k}$  einer solchen Kovarianzmatrix sind bei N Messungen der physikalischen Größen  $x_i$  die [DI97]

$$K_{i,k} = \frac{1}{N(N-1)} \sum_{j=1}^N (x_{i,j} - \bar{x}_i)(x_{k,j} - \bar{x}_k) \quad \text{mit} \quad \bar{x}_k = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N x_{k,j} \quad (3.27)$$

Die Diagonalelemente  $K_{i,i}$  stellen die Varianzen für den jeweiligen Meßwert dar. Die nichtdiagonalen Elemente berücksichtigen dagegen, daß die Unsicherheiten zweier Meßwerte nicht voneinander unabhängig sind, wenn sie an derselben Experimentanordnung bestimmt wurden. Vielmehr gehen in sie gleiche Unsicherheitsquellen ein, da Messungen auf gleichen Detektoren mit gleichen Datenanalysen erfolgen. Für voneinander unabhängige Daten verschwinden die nichtdiagonalen Elemente daher.

Da der Vektor der gesuchten, angepaßten Anregungsfunktion  $\sigma_{\text{ad}} = (\sigma_1, \dots, \sigma_M)$  mit Kovarianzmatrix  $\mathbf{K}_{\text{oad}}$  an M Energiepunkten ausgegeben werden soll, die Anzahl der vorliegenden Responseintegrale N jedoch kleiner als M ist,  $N < M$ , wird zusätzliche Information für eine eindeutige Lösung von  $\sigma_{\text{ad}}$  benötigt. Diese liefert die Guess-Funktion  $\sigma_{\text{g}} = (\sigma_1, \dots, \sigma_M)$  mit Kovarianzmatrix  $\mathbf{K}_{\text{og}}$ , die *a priori*-Information über die gesuchte Anregungsfunktion beinhaltet, die zum Beispiel in Form von Modellrechnungen oder einzelner experimenteller Daten vorliegt.

<sup>2</sup> Die Behandlung von unabhängigen und kumulativen Responsen erfolgt analog zu der in Kapitel 3.1.2 angegeben. In den Differentialgleichungen ist  $\sigma \cdot \varphi$  durch R zu ersetzen.

Nach der Methode des LSA soll für die angepaßte Größe  $\sigma_{ad}$  die Abweichung zu den Werten der Guess-Funktion  $\sigma_g$ , für  $\mathbf{R}_{ad}=(R_{1,ad}, \dots, R_{N,ad})$  - dem Vektor der angepaßten Reaktionsraten - die Abweichung zu den experimentellen Werten  $\mathbf{R}_{exp}$  minimal werden. Mathematisch bedeutet das die Minimierung des folgenden  $\chi^2$ -Ausdruckes

$$\chi^2 = (\mathbf{R}_{ad} - \mathbf{R}_{exp})^T \mathbf{K}_{Rexp}^{-1} (\mathbf{R}_{ad} - \mathbf{R}_{exp}) + (\sigma_{ad} - \sigma_g)^T \mathbf{K}_{og}^{-1} (\sigma_{ad} - \sigma_g) = \min \quad (3.28)$$

unter der Nebenbedingung

$$\mathbf{R}_{ad} = \boldsymbol{\phi}_E \cdot \sigma_{ad} \quad (3.29)$$

Gleichung (3.29) wird mit der Beziehung  $\mathbf{R}_g = \boldsymbol{\phi}_E \cdot \sigma_g$  zu

$$\boldsymbol{\phi}_E (\sigma_{ad} - \sigma_g) - (\mathbf{R}_{ad} - \mathbf{R}_g) = 0 \quad (3.30)$$

umgeschrieben. Gleichung (3.30) wird mit Hilfe des Lagrangeformalismus berücksichtigt, so daß mit Einführung des Lagrangemultiplikatorvektors  $2\boldsymbol{\lambda} = 2(\lambda_1, \dots, \lambda_N)$  die endgültige Form des  $\chi^2$ -Ausdruckes angeschrieben wird:

$$\chi^2 = (\mathbf{R}_{ad} - \mathbf{R}_{exp})^T \mathbf{K}_{Rexp}^{-1} (\mathbf{R}_{ad} - \mathbf{R}_{exp}) + (\sigma_{ad} - \sigma_g)^T \mathbf{K}_{og}^{-1} (\sigma_{ad} - \sigma_g) + 2\boldsymbol{\lambda}^T (\boldsymbol{\phi}_E (\sigma_{ad} - \sigma_g) - (\mathbf{R}_{ad} - \mathbf{R}_g)) = \min \quad (3.31)$$

Die Ableitung nach den Unbekannten  $\mathbf{R}_{ad}$  und  $\sigma_{ad}$  liefert die Bestimmungsgleichung für den Lagrangemultiplikatorvektor  $\boldsymbol{\lambda}$  und schließlich die gesuchte Größe  $\sigma_{ad}$ , für die die Lösung hier ohne Ableitung angegeben wird (siehe zum Beispiel [LY96]):

$$\sigma_{ad} = \sigma_g - \mathbf{K}_{og} \boldsymbol{\phi}^T (\mathbf{K}_{Rexp} + \boldsymbol{\phi} \mathbf{K}_{og} \boldsymbol{\phi}^T)^{-1} (\mathbf{R}_g - \mathbf{R}_{exp}) \quad (3.32)$$

Schließlich soll hier noch erwähnt werden, daß mit diesem Verfahren auch aus Dicktargetexperimenten angepaßte Wirkungsquerschnitte für Neutronen-induzierte Reaktionen extrahiert werden können. Betrachten wir im folgenden eine Bestrahlung eines dicken Targets mit Protonen. Die spektralen Flußdichten der Teilchenfelder im dicken Target, das sind die der primären und sekundären Protonen sowie der sekundären Neutronen, werden nun mit Monte-Carlo-Methoden berechnet. Die  $\gamma$ -spektrometrischen Messungen der N Targetfolien, die an N definierten Position innerhalb des dicken Targets den Teilchenfeldern ausgesetzt waren, liefern den Responseintegralvektor  $\mathbf{R}_m$  für die zu untersuchende Reaktion.  $\mathbf{R}_m$  stellt jedoch nur die Summe der Responseintegrale der drei Teilchenfelder dar, für das Entfaltungsverfahren wird aber der Neutronen-induzierte Anteil  $\mathbf{R}_{n,sek}$  allein benötigt.

Da die Anregungsfunktionen für die Protonen-induzierten Reaktionen zum Restkern im allgemeinen gut bekannt sind, werden die durch die primären und sekundären Protonen induzierten Anteile  $\mathbf{R}_{p,prim}$  und  $\mathbf{R}_{p,sek}$  am gemessenen Responseintegral berechnet. Der durch die Neutronen induzierte Anteil an  $\mathbf{R}_m$  ergibt sich somit zu

$$\mathbf{R}_{n,sek} = \mathbf{R}_m - (\mathbf{R}_{p,sek} + \mathbf{R}_{p,prim}) \quad (3.33)$$

$\mathbf{R}_{n,sek}$  ist in der oben verwendeten Notation für  $\mathbf{R}_{exp}$  einzusetzen und analog kann eine Entfaltung der Anregungsfunktionen der Neutronen-induzierten Reaktion erfolgen. Eine ausführliche Darstellung dieses Verfahrens ist in [LY96] gegeben.

## 4 Experimentelles

In dieser Arbeit werden mit Bestrahlungen mit Protonen und Neutronen zwei unterschiedliche Arten von Experimenten behandelt. Protonenbestrahlungen werden seit vielen Jahren am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie<sup>1</sup> durchgeführt. Dementsprechend sind die Technik sowie die Meß- und Auswertungsmethode für diese Experimente im Zuge der einzelnen Bestrahlungen immer weiterentwickelt worden, so daß sie gut bekannt sind und in dieser Arbeit auf sie zurückgegriffen wurde.

Die Konzeption, Durchführung und Auswertung sind für Protonenbestrahlungen vollständig in der Thesis von Gloris [GL98A] dokumentiert, zudem sind einzelne Experimente bereits in vielen Diplom- und Doktorarbeiten beschrieben. Da in dieser Arbeit außerdem nur ausgewählte, für diese Arbeit kosmophysikalisch interessante Targets aus diesen Experimenten ausgewertet wurde, werden im folgenden nur die zum Verständnis grundlegenden Sachverhalte vorgestellt.

Im Gegensatz dazu wurde an unserem Institut bisher nur eine einzige Bestrahlungsreihe mit Neutronen durchgeführt und ausgewertet [KA94]. Daher lagen nur wenig Erfahrungen für die sich in einigen Punkten grundsätzlich von den Protonenbestrahlungen unterscheidenden Meß- und Auswertungsmethoden vor. Da in dieser Arbeit die Machbarkeit („feasibility“) von Neutronenbestrahlungen am The Svedberg Laboratorium untersucht werden sollte, wurden die bisher an unserem Institut nicht vorliegende Methoden zur Auswertung der bestrahlten Targets entwickelt. Weil diese und die für die Experimente benutzten Techniken in dieser Arbeit zum ersten Mal beschrieben werden, werden sie hier ausführlich behandelt - insbesondere auch zur vollständigen Dokumentation für nachfolgende Experimentatoren.

### 4.1 Protonenbestrahlungen

Protonenbestrahlungen wurden am Laboratoire National Saturne (LNS), Saclay, Frankreich, mit Einschußenergien oberhalb von 200 MeV und am The Svedberg Laboratorium (TSL), Uppsala, Schweden, mit niedrigeren Energien durchgeführt. Aus insgesamt sieben Bestrahlungen wurden die Targets der kosmophysikalisch interessanten Elemente Titan, Eisen und Nickel ausgewertet. Die charakteristischen Experiment- und -bestrahlungsdaten finden sich in Tabelle 4.1. Im folgenden werden nur die für die angesprochenen Targets relevanten Gesichtspunkte behandelt.

Bei allen Experimenten wurde die stacked-foil-technique angewendet, wobei für einen Energiepunkt mindestens drei Folien eines Elementes hintereinander plaziert waren. Dadurch werden zum einen Rückstoßkontaminationen aus umgebenden anderslementigen Targets vermieden, zum anderen wird für die mittlere, zu messende Folie ein Ausgleich der Rückstoßverluste durch die umgebenden erreicht. Alle Targets hatten 15.0 oder 15.7 mm Durchmesser und Dicken zwischen 100 und 250 µm. Exakte Daten der in dieser Arbeit ausgewerteten Folien finden sich in Anhang A.

Vor einen solchen Targetfolienstapel wiederum wurden jeweils drei Aluminiumfolien plaziert, sogenannte Catcher, aus denen nach der in Kapitel 3.1 beschriebenen Methode die Flußdichte der einfallenden Projektile über die Monitorreaktion  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$  bestimmt wurde. Für diese stehen für Protonenenergien bis 200 MeV Wirkungsquerschnitte von Steyn et al. [ST90] und Tobailem [TO81], oberhalb von 200 MeV nur die von Tobailem [TO81] zur Verfügung. Unterhalb von 200 MeV wurde auf die Werte von Steyn et al. zurückgegriffen, die konsistentere Verläufe für die Anregungsfunktionen liefern als die von Tobailem [BU94, BO96].

Die Bestrahlungen am TSL wurden im Vakuum durchgeführt. Zur Halterung aller Targets wurde ein 5 cm langer Aluminiumcontainer benutzt. Der Strahlquerschnitt mit einem Durchmesser von etwa einen halben Zentimeter wurde mit einem in den Strahl einfahrbaren Zinksulfidschirm kontrolliert; die Messung der Einschußenergie erfolgte mit der Time-of-Flight-Methode (TOF).

---

<sup>1</sup> Bis zum 31.12.1993 Zentraleinrichtung für Strahlenschutz der Universität Hannover.

Tabelle 4.1 Übersicht über die Bestrahlungen mit Protonen, von denen die angegebenen Elemente ausgewertet wurden. Aufgeführt ist das Experiment mit Primärenergie  $E_{p,i}$  und Austrittsenergie  $E_{p,f}$ , die Bestrahlungsdauer  $t_{irr}$  mit dem Zeitpunkt des Endes der Bestrahlung  $t_{EOI}$  sowie die Massenbelegung  $\xi$  der Stacks.

Experiment	$E_{p,i}$ [MeV]	$E_{p,f}$ [MeV]	$t_{irr}$ [s]	$t_{EOI}$	$\xi$ [g/cm <sup>2</sup> ]	Elemente
UPPS0H	$137.0 \pm 1.0$	59.1	11400	10.10.1995 / 21 <sup>40</sup>	16.7	Ti
UPPS0L	$177.3 \pm 0.8$	128.8	12780	19.03.1996 / 23 <sup>30</sup>	12.0	Ti
UPPS0S	$97.5 \pm 0.3$	29.0	14400	11.03.1997 / 19 <sup>00</sup>	10.2	Ti
SACL0M	1400	1341	70980	04.10.1995 / 14 <sup>07</sup>	37.4	Ti, Fe, Ni
SACL0N	1000	938	60480	05.10.1995 / 9 <sup>00</sup>	38.4	Ti, Fe, Ni
SACL0P	280	188	55500	22.05.1996 / 9 <sup>54</sup>	31.1	Fe
SACL0R	2600	2541	63600	23.05.1996 / 9 <sup>05</sup>	37.7	Ti, Fe, Ni

Bei den Hochenergieexperimenten am LNS wurde in frühen Experimenten eine Überlagerung der Restkernproduktion durch die primären Protonen durch die sekundärer Teilchen nachgewiesen [LU93]. Um solchen Effekten entgegenzuwirken, wurden die anfangs verwendeten hohen Massenbelegungen eines Stacks von etwa  $16 \text{ g/cm}^2$  drastisch reduziert. Dazu wurde von der Bestrahlung aller Folien hintereinander in einem Stack abgegangen und *mehrere* sogenannte Mini-Stacks mit Abständen untereinander von mindestens 5 cm bestrahlt. Denn in früheren Arbeiten [GL93] hatte sich gezeigt, daß dies ausreicht, um Einflüsse von in einem Stack produzierten Sekundärteilchen auf die weiteren Folienstapel auszuschließen. Die Stacks mit Massenbelegungen von maximal  $2 \text{ g/cm}^2$  wurden jeweils in Aluminiumhalterungen fixiert, die wiederum in Luft auf einer auf den Strahl justierten Schiene hintereinander angeordnet waren.

## 4.2 Neutronenbestrahlungen

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zum ersten Mal in unserer Arbeitsgruppe Bestrahlungen mit Neutronenfeldern am TSL sowie am Beschleuniger CYCLONE der Université Catholique de Louvain (UCL), Louvain-la-Neuve, Belgien, durchgeführt. Außerdem wurde die Möglichkeit genutzt, Targets am Paul-Scherrer-Institut (PSI), Villigen, Schweiz, im Rahmen eines von der Arbeitsgruppe um U. Schrewe, PTB, durchgeführten Experimentes mitzubestrahlen. Bevor auf den Aufbau und die Durchführung der einzelnen Bestrahlungen eingegangen wird, werden einige generelle Gesichtspunkte zur Targetauswahl und zum Stackaufbau vorangestellt.

### 4.2.1 Targetelemente und Stackaufbau

Die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten zur Restkernproduktion sollte für die in Tabelle 4.2 angeführten Elemente erfolgen. Die meisten davon sind kosmophysikalisch interessant, da sie Haupttargetelemente in extraterrestrischen Material sind, zum Beispiel in Meteoroiden. Hinzu kommt das kernphysikalisch interessante Element Kobalt, bei dem alle Produkte der  $[(n,xn), x=1,2,3,4]$ -Reaktionen mit der in dieser Arbeit verwendeten Nachweismethode der  $\gamma$ -Spektrometrie gemessen werden können. Außerdem bestrahlt wurde das für die ATW relevante Blei sowie Graphit, das im Rahmen der Neutronentherapie wichtig ist.

Eine Sonderrolle kommt Silber und Kupfer zu, die als Monitorelemente dienen sollen. Für sie ist es das

Ziel, möglichst genaue Anregungsfunktionen für die erzeugten Produkte zu bestimmen. Die Kenntnis dieser Anregungsfunktionen erlaubt es nach Gleichung (3.23), aus gemessenen Responseintegralen auf die spektrale Flußdichte zurückzuschließen, was für Bestrahlungen nötig wird, bei denen eine Bestimmung der spektralen Flußdichte mit unabhängigen Meßmethoden nicht möglich ist. Für das Produkt  $^{105g}\text{Ag}$  aus Silber liegt mit der Arbeit von Schrewe et al. [SC92A] für Energien bis zu 70 MeV bereits eine Anregungsfunktion vor, die einen Vergleich mit der dieser Arbeit erlaubt. Kupfer ist eine preiswerte Ergänzung dazu, zumal aus recht vielen, mit  $\gamma$ -Spektrometrie zu messenden kurz- und langlebigen Produkten Information extrahiert werden kann.

Tabelle 4.2 Eigenschaften der bei den Neutronenbestrahlungen verwendeten Materialien. Die erste Angabe eines Feldes bezieht sich auf die Bestrahlungen am TSL ab Oktober 1996, die zweite auf die am CYCLONE. Nur eine Angabe ist für Experimente an beiden Anlagen gültig.

Element	Hersteller	Reinheit [%]	Durchmesser [mm]	typische Dicke [mm]	Anwendung
Polyethylen (PE)	-	-	20 / -	-	Testzwecke
C	reines Reaktorgraphit / Goodfellow	- <sup>1</sup> / 99.95	19 / 25	5	Medizin
O als SiO <sub>2</sub>	Heraeus	Qualität: Suprasil	20 / 25	6	Kosmophysik
Al	VAW-Bonn / Goodfellow	- <sup>1</sup> / 99.999	19 / 25	5	Kosmophysik
Si	Wacker	- <sup>1</sup>	19 / 25	5	Kosmophysik
Fe	Vakuumschmelze (Hanau) / Goodfellow	- <sup>1</sup> / 99.5	19 / 25	6	Kosmophysik
Ni	Goodfellow	- <sup>1</sup> / 99.999	19 / 25	6	Kosmophysik
Co	Goodfellow	99.95 / 99.9	19 / 25	4	Kernphysik
Cu	Elektrolytkupfer	mindestens 99.9	19, 20 / 25	2, 5	Monitor
Te	Johnson Matthey	<sup>1</sup>	- / 20	1	Kosmophysik
Ag	Goodfellow	99.95 / 99.99+	19 / 25	4	Monitor
Pb	Goodfellow	99.95	20 / 25	2	ATW

<sup>1</sup> Die genaue Reinheit des Materials ist nicht bekannt.

Die Bestrahlungen, die die Messung von Responseintegralen zur nachfolgenden Bestimmung von Wirkungsquerschnitten zum Ziel hatten, wurden in stacked-foil-technique durchgeführt. Alle Targets wurden gleichzeitig in einem Stapel bestrahlt, wobei die Elemente aufgrund ihrer moderierenden Eigenschaften nach absteigender Massenzahl im Stack angeordnet wurden. Zwischen jeder der in hochreiner Form vorliegenden Targets wurden Kupferfolien angeordnet; die darin gemessenen Aktivitäten der Restkernverteilungen erlauben Rückschlüsse über eine Veränderung der spektralen Flußdichte mit der Position im Stack (Kapitel 5.2.3.2). Diese Kupferfolien waren im allgemeinen nur 2 mm dick, um die Absorption von Neutronen durch Kernreaktionen im Stack gering zu halten sowie dem begrenzten Platz in der Targetkammer Rechnung zu tragen. Am Anfang des Stacks wurde jeweils ein 5 mm dickes Kupfertarget plaziert, dessen höhere Masse die Messung geringerer Responseintegrale erleichtert.

Die Massen der einzelnen Scheiben beliefen sich auf etwa 15 g - verglichen mit 0.2 g der Folien der Protonenbestrahlungen. Die Wahl einer solch großen Masse erklärt sich aus der bei den Neutronen gegenüber den Protonenbestrahlungen um etwa einen Faktor  $10^5$  geringeren Neutronenflußdichte und dem Ziel, genügend Aktivität einer möglichst breiten Palette lang- und kurzlebiger Nuklide zu erzeugen, die mit gängigen Meßmethoden nachgewiesen werden können. Insgesamt resultierten dadurch Massenbelegungen zwischen 36 und 45  $\text{gcm}^{-2}$  bei den Aktivierungsbestrahlung am TSL und am CYCLONE.

Um bei der späteren  $\gamma$ -spektrometrischen Messung eine eindeutige Identifizierung der Targets zu gewährleisten sowie zur Kennzeichnung der Experimente werden Folien- und Experimentnamen vergeben. Der Experimentname besteht aus sechs Zeichen, von denen die ersten vier den Bestrahlungsort und die beiden letzten die einzelnen Bestrahlungen kennzeichnen. Die Foliennamen bestehen ebenfalls aus sechs Zeichen, von denen die ersten beiden das chemische Element bezeichnen, das dritte die Kennung des bestrahlten Stacks und die letzten drei Zeichen die Folien fortlaufend nach der Position im Stack durchnummerieren. In der Regel ist diese Numerierung nur für die zwischen den verschiedenen Elementfolien positionierten Kupferfolien relevant, da von den eigentlichen Elementen nur jeweils eine Folie bestrahlt wurde. Ein Großteil der Bestrahlungsfolien lag in 1 mm oder 2 mm dicken Ausführungen vor, was eine variabelere Zusammenstellung der Stacks erlaubt. Daher kann ein unter einem Namen geführtes Target durchaus aus mehreren dünneren Folien zusammengesetzt sein. Beispielsweise besteht das am TSL bestrahlte, 6 mm dicke Nickeltarget NI1001 des Experimentes UPPN01 aus drei Einzeltargets. Die genaue Zusammensetzung der Stacks ist in Anhang D dokumentiert.

## 4.2.2 Durchführung der Bestrahlungen am TSL, Uppsala

Die Bestrahlungen am TSL wurden an der Neutronenbeamline [CO90] in Kollaboration mit Mitarbeitern des TSL, des Department of Neutron Research und des Department of Neutron Research at Studsvik der Universität Uppsala sowie der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln durchgeführt.

### 4.2.2.1 Aufbau der Bestrahlungseinrichtung

Abbildung 4.1 zeigt den Aufbau der Bestrahlungseinrichtung am TSL. Die in der Abbildung von links auf das in der Marble Hall aufgebaute Lithiumtarget treffenden Protonen erzeugen über die gut untersuchte  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  Reaktion [SC97, WA82] ein quasimonoenergetisches Neutronenfeld. Hinter dem Lithiumtarget werden die Protonen durch Ablenkmagneten in einen gut abgeschirmten „Beamdump“ am Ende eines etwa acht Meter langen Tunnels gelenkt.

Die Neutronen dagegen propagieren geradlinig und werden durch ein System von drei Kollimatoren zu einem Strahl definiert. Das Strahlvakuum endet hinter dem ersten Kollimator. Geladene Teilchen, die beim Durchtritt durch das das Vakuum begrenzende Diaphragma erzeugt werden, werden durch den Clearing-Magneten entfernt. Die eigentliche Halle für die Experimente mit diesem Strahl ist die geräumig angelegte Blue Hall, in der etwa 9 m hinter dem Lithiumtarget am (n,p)-Target Experimente zur (n,p)-Reaktion stattfinden. Außerdem bietet sie Platz für weitere Experimentaufbauten. An dieser Position wird durch die Kollimatoren und die gute Abschirmung der Blue Hall vom Beamdump ein gut definiertes, reines Neutronenfeld gewährleistet. Im Gegensatz dazu kann man dies in der Marble Hall nicht erwarten, da Verdampfungsneutronen aus dem Beamdump und Streuprozesse von Neutronen an der Be-

Tabelle 4.3 Kenndaten der Neutronenbeamline am TSL (Kurzbezeichnungen siehe Tabelle 4.5).

Lithiumtarget	Material:	99.984 % ${}^7\text{Li}$
	Durchmesser:	30 mm
	Dicke:	2-15 mm
Protonenstrahl	Energien $E_p$ :	25 - 180 MeV
	$E_p < 100$ MeV:	$I_p$ maximal 10 $\mu\text{A}$
	$E_p > 100$ MeV:	$I_p$ 0.2 - 0.6 $\mu\text{A}$ [AN96]
Neutronen-Peakflußdichte	$\sim 0.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \mu\text{A}^{-1} (\text{mmLi})^{-1}$	
	Siehe dazu Kapitel 5.2.2	

schleunigeranlage und an den Wänden in der im Vergleich zur Blue Hall kleinen Halle einen zusätzlichen Neutronenuntergrund erzeugen. Tabelle 4.3 gibt die typischen Daten der Neutronenbeamline an.

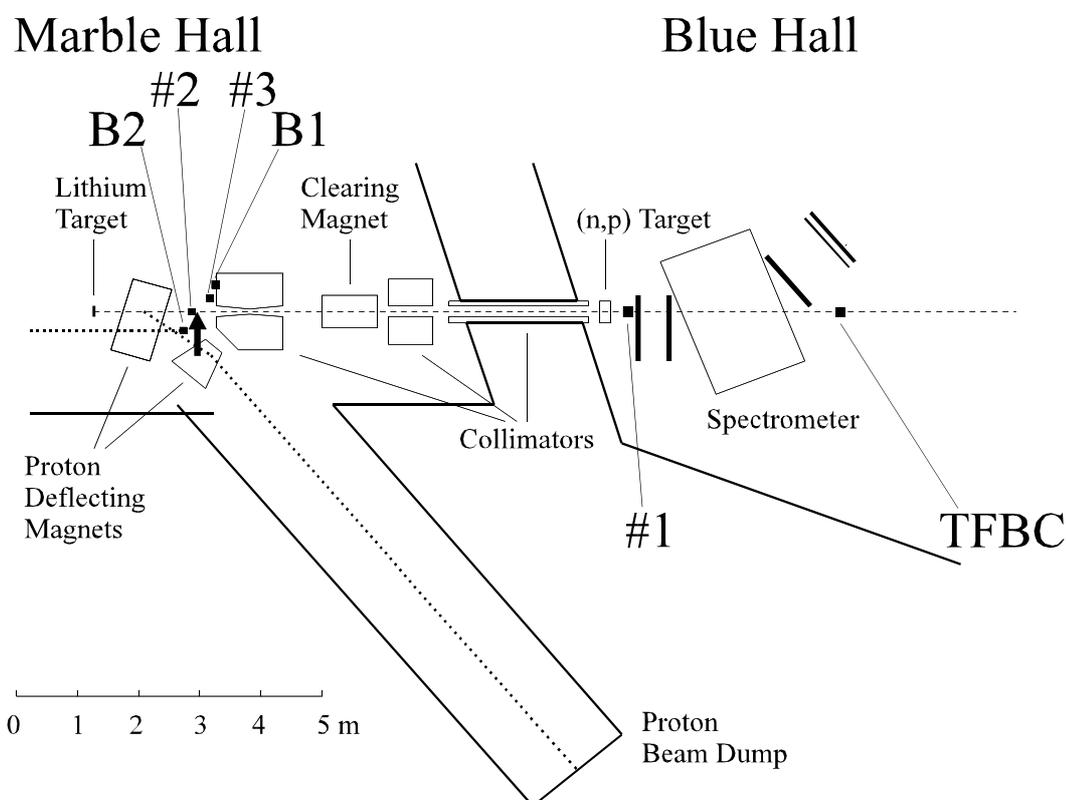


Abbildung 4.1 Aufbau der Neutronenbestrahlungseinrichtung am TSL. B1, B2, #1-3 geben die Positionen der Stacks beim Testexperiment im März 1995 an. Der Pfeil deutet auf die im Herbst 1996 installierte Bestrahlungsposition hin. Näheres siehe Text.

#### 4.2.2.2 Bestrahlungen

Die während dieser Arbeit am TSL durchgeführten Bestrahlungen spiegeln - da es die ersten ihrer Art am TSL sind - jeweils ein gewisses Entwicklungsstadium wider, das sich in Experimentaufbau und Zielsetzung unterscheidet. Entsprechend der zeitlichen Abfolge werden drei Experimenttypen unterteilt, die sich jeweils aufbauend auf den vorherigen Bestrahlungen mit einer fortgeschrittenen Zielsetzung ergaben und die im folgenden chronologisch beschrieben werden.

##### a) Machbarkeitstudien

Das erste Bestrahlungsexperiment TEST wurde im März 1995 durchgeführt und hatte zum Ziel, die Machbarkeit von Aktivierungsexperimenten an dieser Anlage zu testen. Es sollte untersucht werden, ob dort mit Bestrahlungen eine zum Nachweis mit konventionellen Meßmethoden genügende Anzahl von Restkernen erzeugt werden kann. Dazu wurden drei Stacks #1, #2 und #3 an den in Abbildung 4.1 eingezeichneten Stellen bestrahlt, deren Zusammensetzungen und Positionen in Tabelle 4.4 angegeben sind. Zur Untersuchung des Raumuntergrundes wurden außerdem zwei Hintergrundmonitore B1 und B2 außerhalb des Strahls aufgehängt (Tabelle 4.4). Für die Positionierung der Stacks existierten keine eigens für dieses Experiment fest angebrachten Supports, die reproduzierbar aufgestellt werden konnten. Alle Stacks wurde in Luft bestrahlt, da das Strahlvakuum in diesem Experiment bereits hinter dem ersten Ablenkmagneten für die Protonen (Magnet BMB4) endete.

Tabelle 4.4 Zusammensetzung und Positionen der bestrahlten Stacks und Folien im Experiment TEST.

Stack	Position	Targets ( $\varnothing = 50$ mm, Dicke $d = 1$ mm)
#2	159 cm hinter Lithiumtarget im Strahl	Al, Fe, Cu, SiO <sub>2</sub> , Si ( $d = 300$ $\mu$ m)
#1	873 cm hinter Lithiumtarget im Strahl	Al, Fe, Cu, SiO <sub>2</sub> , Si ( $d = 300$ $\mu$ m)
#3	(30 cm hinter, 20 cm links) bezüglich #2	Al, Cu
B1	(12 cm vor, 29 cm rechts, 50 cm unter) bezüglich #2	Cu
B2	(40 cm hinter, 43 cm links, 40 cm unter) bezüglich #2	Cu

Während der gesamten Bestrahlung wurde die Flußdichte im hochenergetischen Peak der spektralen Flußdichte mit Hilfe eines „Thin-Film-Breakdown-Counters“ (TFBC in Abbildung 4.1) [CO97] in Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe um V. Eismont vom V.G. Khlopin Radium Institut, St. Petersburg, Rußland, gemonitort.

Ein TFBC besteht aus einer Schicht von 0.3 mm dicken monokristallinem Silizium, an die eine Spannung von etwa 80 V angelegt wird. In der Mitte von zwei solchen TFBC war in diesem Experiment ein <sup>238</sup>U-Target plaziert, das beidseitig auf eine 0.1 mm dünne Aluminiumschicht aufgebracht war. Findet in diesem Material mit Spaltquerschnitt  $\sigma_{nf}(E_n)$  eine durch Neutronen induzierte Spaltung statt, so wird ein Spaltfragment mit einer Efficiency  $\epsilon_f$  im TFBC durch einen Spannungszusammenbruch detektiert. Für eine <sup>238</sup>U-Folie mit einer Anzahl  $p$  von Targetkernen pro Fläche wird ein Neutron also mit der Wahrscheinlichkeit  $\epsilon_n = \epsilon_f \cdot p \cdot \sigma_{nf}(E_{Peak})$  im Energieintervall  $[E_{Peak} - \Delta E, E_{Peak} + \Delta E]$  um die Energie  $E_{Peak}$  des Peaks registriert. Die Trennung der Ereignisse in die durch die Peakneutronen induzierten und die durch die Neutronen des Low-Energy-Tails verursachten erfolgt durch die Anwendung der TOF-Technik. Ist  $N_{nf}$  die Anzahl der vom TFBC gemessenen Ereignisse pro Zeiteinheit, so berechnet sich der gesuchte Neutronenstrom  $\phi$  [ $s^{-1}$ ] wie folgt:

$$\phi = \frac{N_{nf} \cdot k}{\epsilon_n} \quad \text{mit} \quad k = \sigma_{nf}(E_{Peak}) \cdot \frac{\int_{E_{Peak}-\Delta E}^{E_{Peak}+\Delta E} \phi_E dE}{\int_0^{\infty} \phi_E \cdot \sigma_{nf}(E) dE} \quad (4.1)$$

Die für das Experiment TEST benutzten TFBCs hatten eine sensitive Fläche mit einem Durchmesser von 7 cm und waren 12.22 m vom Lithiumtarget entfernt aufgestellt. Durchmesser und Abstand der TFBCs wurden unter Benutzung des Abstandsquadratgesetzes so gewählt, daß auf Stack #1 dieselbe Anzahl von Neutronen traf wie auf die TFBC ( $\varphi \cdot \pi \cdot (2.5/8.73)^2 = \varphi \cdot \pi \cdot (3.5/12.22)^2$ ), so daß eine Aussage über die Peakflußdichte der Neutronen am Ort von Stack #1 möglich war.

### b) Aktivierung in einer fest installierten Kammer

Infolge der positiven Ergebnisse des Testexperimentes (Kapitel 5.2.1.1) wurde im Herbst 1996 in der Marble Hall eine Bestrahlungseinrichtung aufgebaut, die eine fixierte, fest installierte Bestrahlungsgeometrie für weitere Bestrahlungen gewährleistet. Abbildung 4.2 zeigt den Aufbau der Einrichtung im Schema, deren Position in Abbildung 4.1 durch den Pfeil markiert ist.

Die Neutronentargets werden vor dem Experiment in einem Aluminiumcontainer gestapelt, dem sogenannten Shuttle, das für die Proben einen maximalen Durchmesser von 25 mm und eine Länge von 66 mm erlaubt. Die Folien mit 20 beziehungsweise 19 mm Durchmesser (Tabelle 4.2) wurden mit einem Alumi-

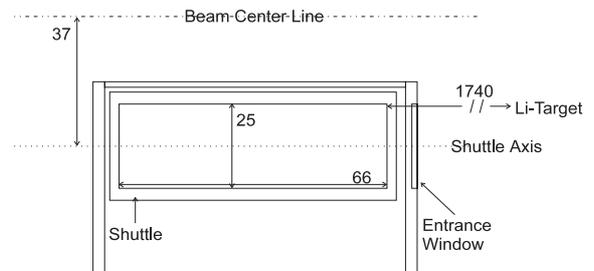


Abbildung 4.2 Schemazeichnung der Bestrahlungskammer - nicht alle Details sind eingezeichnet. Die angegebenen Längen sind in mm.

niemeinsatz im Container zentriert. Während der Bestrahlung befindet sich das Shuttle in Luft und wird vom Strahlvakuum direkt darüber durch eine dünne Aluminiumplatte abgetrennt, wobei auch das weitere, die Bestrahlungskammer aufbauende Material aus Aluminium besteht.

Tabelle 4.5 Übersicht über die Bestrahlungen am TSL. Angegeben ist das Experiment, die Protonenenergie  $E_p$  und -strom  $I_p$ , die Dicke des Lithiumtargets  $d(\text{Li})$ , die Bruttobestrahlungsdauer  $t_{\text{irr}}$  mit dem Zeitpunkt des Endes der Bestrahlung  $t_{\text{EOI}}$  sowie die jeweils bestrahlten Targetelemente und das Ziel des Experimentes.

Experiment	$E_p$ [MeV]	$d(\text{Li})$ [mm]	$I_p$ [ $\mu\text{A}$ ]	$t_{\text{irr}}$ [s]	$t_{\text{EOI}}$	Targets	Ziel
TEST	76.4 $\pm 0.1$	8	5	71520	22.03.1995 $6^{00}$	→ Tab 4.4	Machbarkeit
UPPNCC	78.1 $\pm 0.2$	4	3	3600	16.10.1996 $18^{20}$	C, PE	Absorption
UPPN02	78.1 $\pm 0.2$	4	3	45600	17.10.1996 $9^{11}$	Cu, PE	Absorption
UPPNPE	78.1 $\pm 0.2$	4	3	9420	17.10.1996 $14^{52}$	PE	Homogenität
UPPN01	78.1 $\pm 0.2$	4	3	145980	19.10.1996 $13^{15}$	C, Al, $\text{SiO}_2$ , Si, Fe, Ni, Co, Cu, Ag	Aktivierung
UPPN07	97.5 $\pm 0.3$	8	3	6960	12.03.1997 $13^{08}$	C, PE	Absorption
UPPN08	97.5 $\pm 0.3$	8	3	2520	12.03.1997 $14^{52}$	C, Cu	Absorption
UPPN09	97.5 $\pm 0.3$	8	3	249600	15.03.1997 $14^{59}$	C, Al, $\text{SiO}_2$ , Si, Fe, Co, Ni, Cu, Ag, Pb	Aktivierung
UPPN0A	162.7 $\pm 1.0$	15	0.22	4380	26.05.1997 $20^{06}$	C, PE	Aktivierung
UPPN0B	162.7 $\pm 1.0$	15	0.22	387540	31.05.1997 $9^{37}$	$\text{SiO}_2$ , Si, Fe, Co, Ni, Cu, Ag, Pb	Aktivierung
UPPN0C	98.5 $\pm 0.3$	4	0.25 - 1.5	9900	20.01.1998 $17^{34}$	Cu, C	TFBC / Absorption $^{238}\text{U}$ 10, $^{238}\text{U}$ 17 $^{238}\text{U}$ 10, $^{238}\text{U}$ 17 <sup>1</sup>
UPPN0D	98.5 $\pm 0.3$	4	1.5	54300	21.01.1998 $9^{16}$	Cu	TFBC / Absorption $^{238}\text{U}$ 10, $^{238}\text{U}$ 17 $^{238}\text{U}$ 10, $^{238}\text{U}$ 17
UPPN0E	98.5 $\pm 0.3$	4	1.5 - 3.3	267900	24.01.1998 $13^{45}$	C, $\text{SiO}_2$ , Si, Co, Cu, Ag, Pb	TFBC / Aktivierung $^{209}\text{Bi}$ 10, $^{238}\text{U}$ 17 $^{238}\text{U}$ 10, $^{209}\text{Bi}$ 17

<sup>1</sup> Angegeben ist das spaltbare Material und der Durchmesser des TFBC vor (obere Zeile) und hinter (untere Zeile) dem Stack in Strahlrichtung. Weiteres siehe Text unter c).

Da die Marble Hall während der Experimente nicht zu betreten ist, wird das Shuttle aus einer während der Bestrahlung zugänglichen Position im Beamkorridor pneumatisch durch eine Plastikröhre in die Marble Hall geschossen, wo es in einem kleinen Aufzug zu liegen kommt. Dieser hebt die Shuttleachse 3.7 cm unterhalb der zentralen 0°-Achse des Neutronenstrahls in die in Abbildung 4.2 gezeigte Position. Die erste Folie befindet sich 174 cm hinter dem Lithiumtarget und wird unter maximal 1.55° bestrahlt. Die Bestrahlung an dieser dezentrierten Position sollte die Neutronen um die 0°-Achse nicht beeinflussen, die unmittelbar nach dem Shuttle den ersten Kollimator passieren und die dann in der Blue Hall für Experimente genutzt werden. Tatsächlich zeigte die Bestrahlungsreihe im Oktober 1996, daß durch diese Anordnung eine parasitäre Nutzung des Neutronenstrahls möglich ist, ohne die gleichzeitige Durchführung der Experimente in der Blue Hall zu stören. Um auch die bis dahin nicht mögliche Anwendung von 180 MeV Protonen an der Neutronenbeamline zu ermöglichen, wurde der Abstand der Kammer vom Lithiumtarget im Herbst 1997 infolge der dafür nötigen Umbauarbeiten von 174 cm auf 192 cm geändert.

In dieser Kammer wurden im Rahmen dieser Arbeit die in Tabelle 4.5 aufgelisteten neun Experimente mit drei Primärenergien durchgeführt. Für jede Energie stand jeweils vier bis sechs Tage Strahlzeit zur Verfügung. Nachdem zunächst generelle Aspekte wie die Absorption der Neutronen im Stack und die Homogenität der Aktivierung über die Querschnittsfläche der Targets das Ziel der Bestrahlungen waren, wurde der Hauptanteil der Strahlzeit zur Aktivierung von Targets für die Bestimmung von Anregungsfunktionen genutzt.

### c) Bestimmung der Flußdichte im Stack mit Hilfe von TFBC

Um aus der Gesamtheit der durchgeführten Bestrahlungen mit Hilfe des LSA (Kapitel 3.2) Anregungsfunktionen zu entfalten, benötigt man die Flußdichte der einfallenden Neutronen. In den unter b) angeführten Experimenten wurde diese jedoch nicht gemessen, sondern die Aktivitäten der Restkerne wurden lediglich relativ zu den Produkten der ebenfalls im Stack positionierten Monitorelemente Kupfer und Silber bestimmt. Im nächsten Schritt wurde daher die Möglichkeit untersucht, die Neutronenflußdichte direkt im Shuttle zu messen. Wie unter a) bereits dargestellt, können dazu TFBCs genutzt werden, deren geringe Dicke die Strahlparameter kaum beeinflusst und die auch in Luft positioniert werden können.

Ein erstes Experiment zu einem solchen Flußdichtemonitoring wurde in Zusammenarbeit mit A.V. Prokofiev und A.N. Smirnov vom V.G. Khlopin Radium Institut, St. Petersburg, Rußland, während der Strahlzeit im Januar 1998 durchgeführt. TFBCs wurden *direkt* am Ort des Shuttles positioniert. Abbildung 4.3 zeigt dazu die Schemazeichnung des Aufbaus. Ein Shuttle wurde auf 5.2 cm gekürzt und in diesem in üblicher Art und Weise die Targets gestapelt. Vor und hinter dem Shuttle wurden je zwei TFBCs platziert, deren Durchmesser sowie das vor ihnen positionierte spaltbare Material in Tabelle 4.5 in Spalte 8 angegeben sind. Die maximale sensitive Fläche der TFBCs war aus Fertigungsgründen auf 17 mm im Durchmesser beschränkt. Daher wurden die Aktivierungstargets aus Kupfer als Kreisscheiben mit 17 und 10 mm Durchmesser und einem zu 19 mm Gesamtdurchmesser ergänzenden Ring gearbeitet, um während der Aktivierung zumindest für die direkt neben den TFBCs positionierten Targets dieselbe Monitorfläche zur Verfügung zu stellen. Die Verwendung der zwei Größen der Targets beziehungsweise TFBCs erlaubt zusätzlich eine Aussage über die Homogenität der Bestrahlung über dessen Querschnitt.

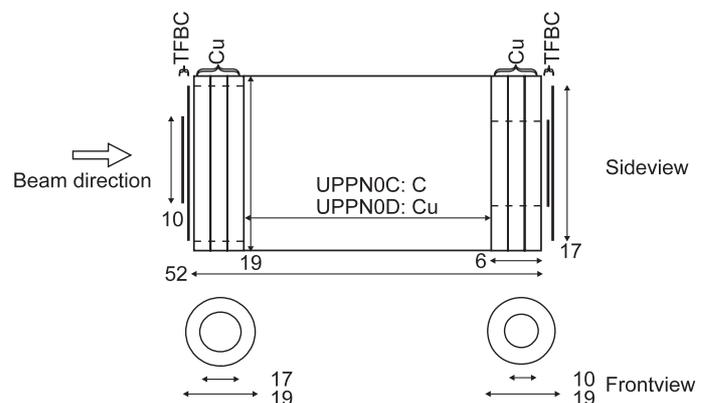


Abbildung 4.3 Schemazeichnung des Aufbaus der Experimente UPPN0C/OD. Alle Längenangaben sind in mm. TFBC bezeichnet die Einheit aus um weniger als 1 mm voneinander entfernten spaltbaren Material und TFBC (in Strahlrichtung).

Wegen der für die TFBCs zusätzlich nötigen Verkabelung an der Bestrahlungskammer wurden die Shuttles vor jeder Bestrahlung manuell in der Aktivierungsposition in der Marble Hall plaziert. Zwei kurze Experimente (UPPN0C/0D) wurden durchgeführt, um die zwischen vorderer und hinterer Position mit den TFBCs gemessene Abnahme der Flußdichte mit der Verminderung der Aktivität der Kupfertargets bei verschiedenen Absorbermaterialien (UPPN0C: C und UPPN0D: Cu) dazwischen zu vergleichen. Die dritte Bestrahlung (UPPN0E) diente der Aktivierung mit Schwerpunkt auf die Monitorelemente Kupfer und Silber, die beide benachbart vorne und hinten positioniert wurden. So werden die Aktivitäten der Silbertargets direkt an die der Kupfertargets angebunden - ohne weitere den Neutronenstrahl beeinflussende Materialien dazwischen. Infolge dessen und wegen der geringeren Länge des Shuttles wurden nicht alle weiteren in Tabelle 4.2 aufgeführten Targetelemente mitbestrahlt.

### 4.2.2.3 Aufzeichnung relativer Strahlintensitäten

Zu einer exakten Auswertung der Experimente ist die Aufzeichnung der relativen Intensitäten der einfallenden Projektile während der Bestrahlung nötig, da dies zu einer genauen Berechnung der Aktivierung gebraucht wird - dies ist insbesondere für die kurzlebigen Nuklide unverzichtbar. Da die Flußdichte der Neutronen direkt mit dem Strom der auf das Lithiumtarget einfallenden Protonen korreliert ist, werden letztere zur Registrierung der relativen Intensität herangezogen. Hierfür wird der Protonenstrom im Beamdump gemessen und die Ergebnisse online als Signale BC\_X410 und BC\_AUX1 zur Verfügung gestellt. Für eine Kalibrierung dieser Signale gegen den Protonenstrom auf das Lithiumtarget wird der Strom mit dem Cup BC\_FC\_B2 vor dem Lithiumtarget gemessen; durch diese Messung wird die Neutronenproduktion unterbrochen.

Tabelle 4.6 Ergebnisse der Loggeraufzeichnungen für die Bestrahlungen am TSL im März und Mai 1997. Angegeben sind die Protokolle von Ziemann (ZM) und vom eigenen Frequenzzähler (FZ) für einen Zeitpunkt und als Mittelwert über die gesamte Bestrahlung.

		BC_FC_B2	BC_X410	BC_AUX1
		[ $\mu$ A]	[ $\mu$ A]	[ $\mu$ A]
März 1997	15.03.1997, 21 <sup>29</sup> h (ZM)	3.00	2.58	2.68
	Mittelwerte (ZM)	-	2.82	3.11
	Mittelwert (FZ)	-	-	3.09
	Übereinstimmung in 5 %		BC_X410 (ZM)	BC_AUX1 (ZM)
	BC_AUX1 (FZ)	-	94 %	99 %
	BC_AUX1 (ZM)	-	96 %	-
Mai 1997	31.05.1997, 13 <sup>24</sup> h (ZM)	0.22	0.084	0.185
	Mittelwerte (ZM)	-	0.081 <sup>1</sup>	0.179
	Mittelwert (FZ)	-	-	0.185
	Übereinstimmung in 5 %		BC_X410 (ZM)	BC_AUX1 (ZM)
	BC_AUX1 (FZ)	-	71 %	94 %
	BC_AUX1 (ZM)	-	76 %	-

<sup>1</sup> Der niedrige Wert ist auf eine Nullpunktverschiebung im Aufnahmesystem zurückzuführen - es wäre ein Wert von etwa 0.180 zu erwarten gewesen, da etwa 20 % der am BC\_FC\_B2 registrierten Protonen auf dem Weg bis zum Ende des Beamdumps verloren gehen.

Die Registrierung der Intensität erfolgte mit dem eigenen Frequenzzähler (FZ) der ELV GmbH, womit im März und Mai 1997 das Signal BC\_AUX1 geloggt wurde. Redundant zu dieser eigenen Aufzeichnung wurden von V. Ziemann vom TSL zur Verfügung stehende Signale der relativen Intensitäten aufgenommen [ZI97]. Für die Bestrahlungen im März und Mai 1997 waren dies die Signale BC\_X410, BC\_FC\_B2 und BC\_AUX1. Diese und die eigene Aufzeichnungsmethode sollen im folgenden verglichen werden, um die Qualität des gegenseitigen Ersatzes der Signale zu untersuchen, falls einmal nicht alle Registrierungsmöglichkeiten während einer Bestrahlung zur Verfügung stehen.

Es zeigt sich zunächst, daß sich die Signale BC\_X410 und BC\_AUX1 im Mittel um einen konstanten Faktor unterscheiden. Korrigiert man um diesen, so lassen sich Aussagen zur Übereinstimmung der einzelnen Signale im Rahmen von anzusetzenden Schwankungsbreiten treffen. Die Ergebnisse der Aufzeichnungen für die angesprochenen Bestrahlungen sind in Tabelle 4.6 wiedergegeben. Als Richtwerte sind jeweils für einen Zeitpunkt am Ende der Strahlzeit die von Ziemann aufgezeichneten Daten aller drei Signale dokumentiert sowie die Mittelwerte aus beiden Aufzeichnungsprotokollen. Zusätzlich sind die Ergebnisse des Vergleiches der Signale über die Dauer der Bestrahlung innerhalb des angegebenen Schwankungsbereiches von 5 % angegeben.

Das Signal BC\_X410 zeigt zu beiden BC\_AUX1 Loggersignalen eine größere Schwankung als die beiden BC\_AUX1 Signale untereinander, die sehr gut übereinstimmen. Die Schwankung des BC\_X410 Signals ist zudem für die Mai-Bestrahlung sehr viel größer, für die außerdem auch die Übereinstimmung der beiden BC\_AUX1 Signale um 5% weniger gut ist als bei der März-Bestrahlung. Wegen der niedrigen Ströme ist diese größere Schwankung während der Mai-Bestrahlung wahrscheinlich instrumentell bedingt; zum Beispiel haben Leckströme dann einen größeren Einfluß als bei höheren Strömen.

Infolge der guten Übereinstimmung der Signale kann das BC\_AUX1-Logging sowohl mit dem FZ als auch nach Ziemann erfolgen. Allerdings zeigt das Logging von Ziemann kleinere Unregelmäßigkeiten, da im März-Experiment zu 3% der Zeit entweder nur BC\_AUX1 oder nur BC\_X410 geloggt wurde, anstatt wie zu erwarten beide Signale. Für die Auswertung der Experimente wurden daher die FZ-Werte herangezogen.

Abschließend bleibt für die Durchführung der Bestrahlung anzumerken, daß unbedingt ein regelmäßiger Onlineabgleich des FZ-Systems mit den aktuellen Ausdrucken und Meßwerten des Beschleunigerpersonals vorzunehmen ist, da nur dann Unregelmäßigkeiten wie zum Beispiel Nullpunktverschiebungen im System registriert und geklärt werden können. So ist es zum Beispiel möglich, daß während der Bestrahlung der FZ das doppelte des Sollmeßwertes registriert. Die genaue Ursache hierfür ist nicht bekannt; eine zu niedrige Triggerschwelle am FZ oder aber auch eine fehlende Terminierung des Signals im FZ kann dafür verantwortlich sein.

### 4.2.3 Bestrahlungen am CYCLONE/Louvain-la-Neuve

In Ergänzung und Erweiterung der Experimente am TSL wurden für Neutronenenergien bis 70 MeV Bestrahlungen am CYCLONE, UCL, im Rahmen einer Kollaboration mit Mitarbeitern der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB), Braunschweig, und der UCL, Louvain-la-Neuve, durchgeführt.

Abbildung 4.4 zeigt den Aufbau der Bestrahlungseinrichtung am UCL. Die Protonen werden im in Abbildung 4.4 links unten angedeuteten Zyklotron beschleunigt. Mit dem Deflektor D kann die Strahlpuls-wiederholungsrate reduziert werden,

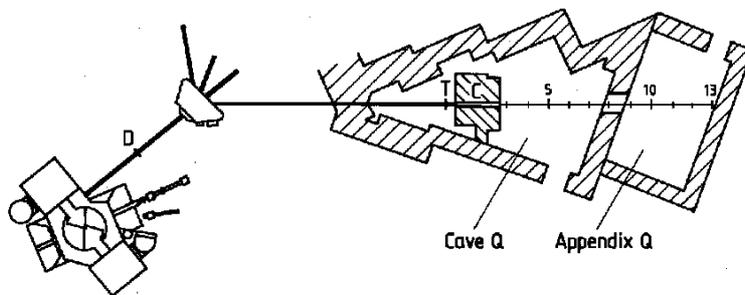


Abbildung 4.4 Aufbau der Neutronenbestrahlungseinrichtung am CYCLONE/UCL. Eingezeichnet sind der Deflektor D, das Lithiumtarget T, der Kollimator C sowie die Experimentierhallen. Die Abstände hinter T sind in Meter.

so daß die Pulse je nach Beschleunigermodus durch Intervalle von 500 ns oder 1  $\mu$ s getrennt sind. Die Protonen werden vom Switchingmagneten auf das Lithiumtarget T gelenkt, hinter dem sich direkt ein 10 mm dicker Graphit-Beamdump befindet, der die Protonen abbremst. Die Neutronen dagegen passieren den Beamdump sowie den darauffolgenden Kollimator C und legen bis zum Appendix Q 13 m Flugstrecke zurück. Dies, die Reduzierung der Pulswiederholungsrate und Pulsauern von 1 ns machen die präzise Anwendung der TOF-Technik zur Messung der spektralen Flußdichte möglich.

Infolge dieser Ausgangslage ist das Neutronenfeld an der Anlage bereits sehr gut untersucht [SC97], da dieses die Arbeitsgruppe von H. Schuhmacher mit verschiedenen Techniken ausgemessen hat, die auch während der Aktivierungsexperimente angewandt wurden. Die Flußdichte wurde mit einer Spaltkammer und einem Plastikszintillatordetektor (NE102) gemonitort. Das laterale Profil der kollimierten Neutronen wurde mit einer Drahtkammer, die spektrale Flußdichte durch die Anwendung der TOF-Technik mit einer  $^{238}\text{U}$ -Spaltkammer sowie mit einem NE213-Szintillator gemessen. Zusätzlich wurde ein Protonenrückstoßteleskop (PRTC) zur Messung der Peakfluenz eingesetzt. Da die Messung der spektralen Flußdichte vor und hinter dem Stack erfolgte, zeigt sich auch, ob und wie sich die spektrale Flußdichte durch den Stackdurchgang verändert.

Durch die Messung der Flußdichte, der spektralen Flußdichte sowie des Strahlprofils des Neutronenfeldes mit den verschiedenen Methoden sind diese Aktivierungsexperimente eine notwendige und ideale Ergänzung zu den Bestrahlungen am TSL, für die am Bestrahlungsort eine solch genaue Messung der spektralen Flußdichte infolge der geringen Flugstrecke von nur  $\sim 1.8$  m nicht möglich ist. Die mit den Experimenten am UCL bestimmten Anregungsfunktionen dienen für die TSL Bestrahlungen als Monitorfunktionen (Kapitel 4.2.1) und darüber hinaus werden bisher nicht gemessene Wirkungsquerschnitte bereitgestellt.

Daher wurde im Oktober 1997 mit einer die Protonenenergien 36.4, 48.5 und 62.8 MeV umfassenden Experimentreihe begonnen, die über einen Zeitraum von 13 Monaten während dieser Arbeit durchgeführt wurde. Zusätzlich wurde schon vorher (Experiment LOUV01) die Möglichkeit genutzt, für die mittlere Energie parasitär, während einer von der Arbeitsgruppe um H. Schuhmacher durchgeführten Bestrahlung jeweils eine Kupfer- und eine Silberfolie zu bestrahlen. Die Kenndaten der einzelnen Experimente sind in Tabelle 4.7 zusammengefaßt.

Tabelle 4.7 Übersicht über die Bestrahlungen am UCL. Angegeben ist das jeweilige Experiment mit der Protonenenergie  $E_p$ , der mittleren Neutronenenergie  $E_n$  im Peak, der Energie  $E_2$  als unterer Grenze des Peaks, die Bruttobestrahlungsdauer  $t_{\text{irr}}$  mit dem Ende der Bestrahlung  $t_{\text{EOI}}$  sowie die Peakfluenz  $\Phi_{\text{peak}}$  und die Dicke des Lithiumtargets  $d(\text{Li})$ .

Experiment	$E_p$ [MeV]	$E_n$ [MeV]	$E_2$ [MeV]	$t_{\text{irr}}$ [s]	$t_{\text{EOI}}$	$\Phi_{\text{peak}}$ [ $10^9\text{cm}^{-2}$ ]	$d(\text{Li})$ [mm]
LOUV01	48.5	46.0	40	202080	10.03.1997 / 5 <sup>33</sup>	$4.26 \pm 0.26$	3
LOUV02	36.4	32.9	29	150300	13.10.1997 / 7 <sup>90</sup>	$13.3 \pm 0.8$	5
LOUV03	48.5	45.4	40	143220	06.04.1998 / 7 <sup>32</sup>	$16.6 \pm 0.7$	5

Außer im Experiment LOUV01 wurden die Elemente C, Al, O ( $\text{SiO}_2$ ), Si (nicht bei LOUV02), Fe, Ni, Co, Cu, Ag, Te und Pb aktiviert. Für das Experiment LOUV02 waren die Scheiben zur Halterung in einen Messingzylinder der Länge 8.1 cm angeordnet (Abbildung 4.5 a)). Senkrecht gehalten wurden sie strahlabgewandt durch einen ebensolchen und -langen Einschub des Außendurchmessers 2.5 cm. Diese über den Radialabstand der Strahlachse stark inhomogene Massenbelegung verursachte eine entsprechende Absorption und Streuung der Neutronen, so daß hinter dem Stack das normalerweise konstante Strahlprofil mit einer Halbwertsbreite (FWHM) von 5.7 cm nicht mehr gegeben war.

Da während der Bestrahlung jedoch hinter dem Stack gleichzeitig Experimente durchgeführt werden sollten, die gerade dies ausnutzen, wurde für das Experiment LOUV03 eine neue Anordnung gewählt. Zur gleichmäßigen Absorption der Neutronen über das gesamte laterale Strahlprofil wurden die ein-

zelenen Targets in 100x100 mm targetdicke Scheiben mit zentrierten Löchern eingepaßt (Abbildung 4.5 b)). Aus Kostengründen wurden dafür keine hochreinen Materialien verwendet. Außerdem wurden Tellur und Silber durch Cadmium, Kobalt und Nickel durch Eisen sowie Silizium durch Aluminium ersetzt, wobei die Dicken der Scheiben entsprechend den unterschiedlichen makroskopischen totalen Wirkungsquerschnitten angepaßt wurden.

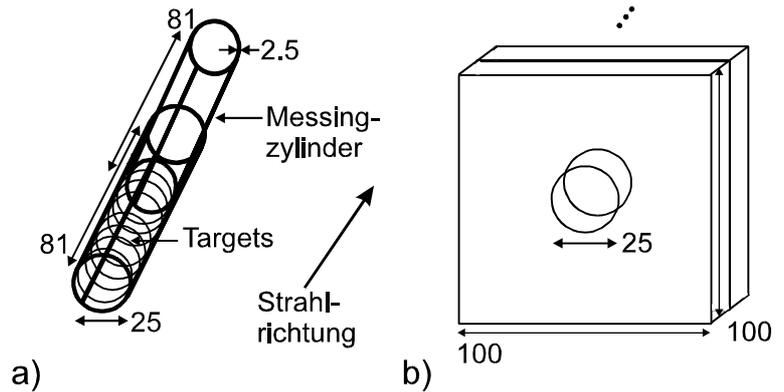


Abbildung 4.5 Schema der Targetanordnung für das Experiment LOUV02 a) und LOUV03 b). Die Längenangaben sind in mm.

### 4.2.4 Bestrahlungen am PSI/Villigen

Die Bestrahlungen am PSI wurden parasitär in Zusammenarbeit mit Schrewe, PTB, durchgeführt. Am PSI wird ein quasi-monoenergetisches Neutronenfeld über die  ${}^9\text{Be}(p,n){}^9\text{B}$  Reaktion erzeugt. Hinter dem Be-Target werden die Protonen mit Hilfe eines Dipolmagneten aus der Strahlachse in einen Faraday-Cup abgelenkt. Dessen elektrischer Strom wird auf einen Stromdigitalisierer gegeben, der einen Impuls pro 10 nC registriert und diese Impulse in Minutenabständen abspeichert. Die Neutronen dagegen propagieren geradlinig und passieren einen Kollimator, der das Profil des Neutronenstrahls für die hinter dem Kollimator aufgebauten Experimente definiert.

Das Neutronenfeld am PSI ist bereits Gegenstand von Untersuchungen gewesen [SC92B] und daher gut ausgemessen. Die Messung der spektralen Flußdichte wurde während der Bestrahlung mit der TOF-Methode an einer  ${}^{238}\text{U}$ -Spaltkammer durchgeführt. Eine Silberscheibe (siehe unten) diente als zusätzlicher Monitor, da das in ihr gemessene  ${}^{105\text{g}}\text{Ag}$ -Responseintegral mit denen vorangegangener Experimente der gleichen Energie verglichen wird. Aus den bekannten Peakfluenzen dieser Experimente wird die Peakfluenz für die aktuelle Bestrahlung bestimmt, rechnet man die jeweiligen Bestrahlungsbedingungen ineinander um. Die Ergebnisse der spektralen Flußdichtemessungen wurden von Schrewe [SC98B] zur Verfügung gestellt und sind zusammen mit den Kenndaten der Experimente in Tabelle 4.8 angegeben.

Bestrahlt wurden für zwei Energien 1 mm dicke Kupfer- und Silbertargets mit Durchmesser 25 mm; direkt dahinter war die oben erwähnte Monitorsilberscheibe gleichen Ausmaßes positioniert. Die Folien waren im Abstand von  $X = 3.962\text{ m}$  hinter dem Be-Target plziert. Die Ergebnisse der spektralen Flußdichtemessungen in Tabelle 4.8 sind jedoch für die sogenannte Referenzposition bei  $X_0 = 7.78\text{ m}$  vom Be-Target angegeben. Um die Flußdichte auf  $X$  umzurechnen, wird einerseits die Flußschwächung in Luft für die Strecke  $X_0 - X$  in Form des Faktors  $k_{\text{air}}$  [SC98B] und andererseits die Abnahme der Flußdichte durch den unterschiedlichen Abstand durch das Abstandsquadratgesetz mit  $k_x = X^2/X_0^2$  berücksichtigt.

Tabelle 4.8 Übersicht über die Bestrahlungen am PSI. Angegeben ist das jeweilige Experiment mit der Protonenenergie  $E_p$ , die mittlere nominelle Neutronenenergie  $E_n$  im Peak, die Energie  $E_2$  als unterer Grenze des Peaks, die Bruttobestrahlungsdauer  $t_{\text{irr}}$  mit dem Ende der Bestrahlung  $t_{\text{EOI}}$ , die Peakfluenz pro Ladung  $Q$ ,  $\Phi_{\text{peak}}/Q$ , der über  $t_{\text{irr}}$  gemittelte Protonenstrom  $I_p$  sowie die im Text definierten Korrekturfaktoren.

Experiment	$E_p$ [MeV]	$E_n$ [MeV]	$E_2$ [MeV]	$t_{\text{irr}}$ [s]	$t_{\text{EOI}}$	$\Phi_{\text{peak}}/Q^1$ [ $\text{cm}^{-2}\text{nC}^{-1}$ ]	$I_p$ [ $\mu\text{A}$ ]
PSIN01	71.5	66	58	206100	10.04.1997 / $10^{00}$	$10.2 \pm 0.7$	1.25
PSIN02	50.4	44	38	161820	13.04.1997 / $16^{45}$	$9.4 \pm 0.2$	1.85
	$k_x=0.259$	$k_p=1.035$	$k_{\text{air(PSIN02)}}=0.980$		$k_{\text{air(PSIN01)}}=0.981$		

<sup>1</sup> Fehlergewichteter Mittelwert aus der Messung per Spaltkammer und dem  ${}^{105\text{g}}\text{Ag}$ -Responseintegral.

Für die Aktivierung der in diesem Experiment benutzten Scheiben mit einem Radius  $R = 12.5$  mm ist außerdem zu beachten, daß die Flußdichte in Abhängigkeit vom radialen Abstand  $q$  zur Strahlachse nicht konstant ist. Vielmehr findet man ein Strahlprofil vor, daß durch die Faltung einer um die Strahlachse zentrierten Gaußfunktion mit einer ebensolchen Rechteckfunktion beschrieben wird. Die Breitenparameter dieser Funktionen hängen vom Abstand  $X$  hinter dem Berylliumtarget ab, so daß die Flußdichte mit dem Faktor  $k_p$

$$k_p(X) = (R^2 \Phi_0(X)) \cdot \left( 2 \cdot \int_0^R q \cdot \Phi(X, q) dq \right)^{-1} \quad (4.2)$$

korrigiert werden muß. Dabei ist  $\Phi_0(X)$  die Fluenz auf der Strahlachse und  $\Phi(X, q)$  die Fluenzverteilung in Abhängigkeit des radialen Abstandes  $q$ .

Die spektremittelten Wirkungsquerschnitte für die PSI-Bestrahlungen  $\overline{\sigma}_{PSI}$  ergeben sich nach Gleichung (3.16) daher mit den Fluenzwerten aus Tabelle 4.8 zu  $\overline{\sigma}_{PSI} = \overline{\sigma} \cdot k_{air} \cdot k_p \cdot k_X$ .

Diese Werte stellen einen weiteren Schritt dazu dar, möglichst viele spektremittelte Wirkungsquerschnitte für Bestrahlungen mit quasimonoenergetischen Neutronenfeldern zur Entfaltung von Anregungsfunktionen für die beiden Monitorelemente Kupfer und Silber zur Verfügung zu stellen.

## 4.3 $\gamma$ -Spektrometrie

Zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte für die durch die Bestrahlung induzierten Produkte muß die Anzahl dieser Restkerne gemessen werden (Kapitel 3.1.1). In dieser Arbeit stand dafür die Meßmethode der  $\gamma$ -Spektrometrie zur Verfügung. Diese hat den Vorteil, daß sie zerstörungsfrei und für Standardanwendungen gut untersucht ist. Hierfür sind die für die Planung, Durchführung und Auswertung der Messungen zu beachtenden einzelnen Punkte in der Literatur [DE88, DE80] beschrieben.

Die in dieser Arbeit angewendeten Methoden und durchgeführten Messungen der mit Protonen und mit Neutronen bestrahlten Proben stellen jedoch zwei spezielle, sich im wesentlichen unterscheidende Verfahren der in der Literatur im allgemeinen beschriebenen dar. Daher werden im folgenden die in dieser Arbeit verwendeten Aufbauten, Kalibriermethoden, Korrekturen und Auswertungsverfahren beschrieben. Zur Vereinfachung werden dabei die mit Protonen und mit Neutronen bestrahlten Proben kurz als Protonen- beziehungsweise Neutronenproben bezeichnet.

### 4.3.1 Grundlagen

Der Großteil der während der Bestrahlung erzeugten Kerne ist radioaktiv. Die meisten dieser Kerne zerfallen durch  $\beta$ -Zerfall und gehen in angeregte Tochterkern über, die die für die zerfallende Nuklide charakteristischen  $\gamma$ -Quanten emittieren. Diese werden bei der  $\gamma$ -Spektrometrie nachgewiesen. Dazu werden heute Reinstgermanium HPGe-Halbleiterdetektoren und am ZSR auch noch ältere mit Lithium dotierte Ge(Li)-Detektoren verwendet [DE88]. In deren Halbleiterkristallen deponieren die  $\gamma$ -Quanten ihre Energie durch Photo- und Comptoneffekt sowie durch die Wechselwirkung der 511 KeV-Annihilationsquanten, die infolge der Paarbildung entstehen.

Durch diese Wechselwirkung entstehen in der Raumladungszone des in Sperrichtung mit etwa zwei bis drei kV betriebenen Halbleiterüberganges Elektron-Loch-Paare, deren Anzahl proportional zur deponierten Energie ist. Der durch ihre Sammlung entstehende elektrische Impuls wird mit Vor- und Spektroskopieverstärkern elektronisch in Signale verarbeitet, die dann mit Analog-Digital-Wandlern (ADC) digitalisiert werden. Entsprechend ihrer Größe werden sie den einzelnen Kanälen eines Vielkanalanalysators (MCA) zugeordnet, der durch ein ORTEC System 919 realisiert und mit 4096 Kanälen betrieben wurde. Die Verteilung der in den einzelnen Kanälen gesammelten Impulse stellt das gemessene Spektrum dar. Dieses wird zur weiteren Auswertung zusammen mit den spezifischen Meß- und Probandaten in binärer Form auf Diskette abgespeichert.

Die Güte eines solchen Systems ist von mehreren Eigenschaften abhängig. So ist für Proben mit geringen Aktivitäten ein großes Ansprechvermögen des Detektors für die Gesamtdeponierung der Energie eines  $\gamma$ -Quants von Vorteil. Diese Nachweiswahrscheinlichkeit, auch als Full-Energy-Peak Efficiency oder kurz Efficiency bezeichnet, beschreibt die Wahrscheinlichkeit, daß ein aus der Probe emittiertes  $\gamma$ -Quant im Detektor seine gesamte Energie abgibt, die dann als Full-Energy-Peak registriert wird. Eine exakte Bestimmung der Efficiency für die benutzte Meßgeometrie ist unerläßlich, da sie nach Gleichung (3.6) in alle weiteren Berechnungen des Wirkungsquerschnittes eingeht.

Im Gegensatz dazu gibt die totale Efficiency das Ansprechvermögen für die Gesamtanzahl der durch ein  $\gamma$ -Quant im Spektrum verursachten Impulse an. Diese umfassen dann die des Full-Energy-Peaks und die des durch unvollständige Energieabgabe entstehenden kontinuierlichen Untergrundes. Beide Nachweiswahrscheinlichkeiten sind von der Meßgeometrie - der Anordnung der zu messenden Probe vor der Detektorkappe - sowie von der Größe des Kristalls selbst abhängig.

Eine weitere charakteristische Größe ist die Halbwertsbreite (FWHM) des Full-Energy-Peaks. Bei optimaler Einstellung der Elektronik und idealen Kristallen läßt sich dieser Peak durch eine Gaußform beschreiben, die in ihrer Breite durch das elektronische Rauschen und der Statistik der Ladungssammlung bestimmt wird. Die Bedeutung der Halbwertsbreite ergibt sich aus der Tatsache, daß bei geringeren Halbwertsbreiten in komplexen Spektren mit vielen nahe beieinander liegenden  $\gamma$ -Linien die einzelnen Linien besser getrennt werden.

### 4.3.2 Detektoren

Die im letzten Kapitel beschriebenen Systemeigenschaften Efficiency und Halbwertsbreite zeigen, inwieweit ein System auf Messungen von hoch oder niedrig aktivierten Proben beziehungsweise komplexen oder einfachen Spektren ausgelegt ist. Daher werden im folgenden die in dieser Arbeit benutzten Detektorsysteme und ihre Kenndaten vorgestellt.

Für die Messungen der Protonenproben standen am ZSR, Standort Am Kleinen Felde, zeitweilig bis zu neun Detektoren zur Verfügung, die in der Dissertation von Gloris [GL98A] ausführlich beschrieben sind. Diese waren infolge der enormen zu messenden Targetanzahl von etwa 50 bis 100 Proben pro Experiment mit den Messungen der Protonenproben zum großen Teil ausgelastet.

Tabelle 4.9 Die zur Messung der Neutronenproben verwendeten Detektoren mit ihren Halbwertsbreiten und Efficiencies, die jeweils für die benutzte Meßgeometrie angegeben sind.

Detektor	Typ	FWHM bei 122/1332 keV	Efficiency bei 120/1332 keV	Abschirmung	Standort
NIR1	HPGe	1.1/2.0	0.096/0.018	10 cm Pb	Herrenhausen
NIR2	HPGe	1.7/3.0	0.17/0.035	10 cm Pb	(Hannover)
BOHR	Ge(Li)	2.1/3.8	0.11/0.012	10 cm Pb	Abteilung Nuklear- chemie (Köln)
PBBURG	Ge(Li)	2.5/4.5	0.19/0.023	10 cm Pb	
GELIHA	Ge(Li)	1.1/2.1	0.078/0.0067	10 cm Fe	
GELIU4	Ge(Li)	0.8/1.9	0.12/0.012	5 cm Pb	Am Kleinen Felde (Hannover)
GELIU2	Ge(Li)	2.5/3.6	0.094/0.0088	5/10 cm Pb	
GE_NEU	HPGe	1.2/2.0	0.10/0.018	10 cm Pb/Cu	
GE_UPP	HPGe	1.1/1.6	0.097/0.0089	2 cm Pb-Rohr um Kappe	TSL (Uppsala)
GE_UCL	HPGe	1.2/2.2	0.058/0.014	5 cm Pb; oben offen; keine (LOUV03)	CYCLONE (Louvain-la-Neuve)

Im Rahmen des ersten Neutronenexperimentes TEST wurde daher zunächst auf die Halbleiterdetektoren NIR1 und NIR2 am Standort Herrenhausen zurückgegriffen, die jedoch nur bis September 1995 zur Verfügung standen. Da die Bestrahlungen im Oktober 1996 mit etwa 20 Proben wesentlich mehr zu messende Targets lieferten, wurde für diese Experimentreihe - angesichts der knappen Detektorressourcen am ZSR - ein Teil der Proben auf Detektoren der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln gemessen. Trotz ihrer hohen Efficiency war deren Einsatz jedoch infolge ihrer großen Halbwertsbreiten auf sehr einfache Spektren beschränkt.

Zusätzlich wurden drei der für die Messungen der Protonenproben benutzten Detektoren für die Neutronenproben teilweise zur Verfügung gestellt, zu denen im November 1996 noch ein vierter, ausschließlich für die Neutronenproben zu nutzender Detektor (GELIU4) dazukam. Zusätzlich stand für die Messungen der kurzlebigen Nuklide direkt nach der Bestrahlung am TSL und am CYCLONE vor Ort jeweils ein HPGe-Detektor zur Verfügung. Alle Detektorspezifikationen sind in Tabelle 4.9 angegeben.

Wichtig zur Messung der niedrig aktivierten Neutronenproben in akzeptablen Meßzeiten sind hohe Ansprechvermögen für die gewählten Meßgeometrien. Da auf bestehende Detektoren zurückgegriffen werden mußte, bei deren Anschaffung nicht speziell auf hohe Efficiencies geachtet wurde, sind diese nicht dahingehend optimiert. Auf die Konsequenzen daraus wird in Kapitel 4.3.4 eingegangen.

Da die durch die Neutronenbestrahlungen erzeugten Aktivitäten zum Teil nur 1 Bq am Ende der Bestrahlung betragen, muß während der Messung der Proben der Detektorkristall sorgfältig gegen die natürliche Umgebungsstrahlung abgeschirmt werden. Diese wird durch primordiale Nuklide und die Glieder der natürlichen Zerfallsreihen verursacht und erzeugt einen zusätzlichen Untergrund im Spektrum, den Nulleffekt. Dieser wirkt sich bei der Auswertung nachteilig aus, da durch ihn die kleinste im Spektrum noch nachzuweisende Nettopeakfläche, die Erkennungsgrenze, heraufgesetzt wird.

Daher wurden alle für lange Messungen genutzten Detektoren mit Blei oder Eisen abgeschirmt, wodurch der Nulleffekt um bis zu einen Faktor 100 reduziert wurde. Die Detektoren für die Messungen der kurzlebigen Nuklide am TSL und UCL waren nur teilweise abgeschirmt; da die Meßzeiten jedoch maximal wenige Stunden betragen, fällt die unvollständige Untergrundreduktion nicht stark ins Gewicht. Der Meßraum am CYCLONE befand sich direkt neben der Beschleunigereinrichtung; ein erhöhter Untergrund bei Strahlströmen von etwa  $8\mu\text{A}$  wurde aber nicht festgestellt. Zusätzlich zur Abschirmung wurden für alle Detektoren Untergrundspektren aufgenommen, mit denen für die Probenspektren ein Untergrundabzug vorgenommen wurde [GL98A].

Entsprechend der geringen Aktivitäten der Neutronenproben ist der durch ihren Comptonuntergrund verursachte Hauptanteil am Untergrund eines Spektrums gering, so daß  $\gamma$ -Quanten aus Fremdquellen leicht nachgewiesen werden. Beispielsweise mußten im März 1997 gleichzeitig Neutronen- und Protonenproben direkt nach der Bestrahlung gemessen werden. In Spektren der Neutronenproben auf einem Detektor (GELIHA) wurden dabei  $\gamma$ -Quanten von den stark aktiven Protonenproben des daneben stehenden, nichtabgeschirmten Detektors detektiert. Infolgedessen muß darauf geachtet werden, die Detektoren von anderen aktivierten im Meßraum gelagerten oder gleichzeitig gemessenen Proben sorgfältig abzuschirmen.

Mit Ausnahme von Silber und Blei erzeugten die bestrahlten Targets infolge ihrer niedrigen Massenzahlen ( $A < 65$ ) und damit der begrenzten Anzahl der produzierten Nuklide relativ einfach zu analysierende Spektren mit bis zu  $\sim 100$  Peaks. Daher reichten die zum Teil relativ großen Halbwertsbreiten und nicht idealen Peakformen der Detektoren am ZSR zur Messung aus. Insbesondere bei den älteren Detektoren GELIHA und GELIU4 wiesen die Peaks ein durch unvollständige Ladungssammlung verursachtes Low-Energy-Tailing auf, das durch das benutzte Peakfitprogramm [WE95] berücksichtigt wurde. Die Blei- und Silberproben mit den komplexen Spektren wurden ausschließlich auf den Detektoren mit geringen Halbwertsbreiten (GE\_NEU und GELIU4) gemessen.

Die Elektronik aller Detektoren war so eingestellt, daß im Energiebereich 20-40 keV bis hoch zu zwei bis zweieinhalb MeV spektroskopiert wurde. Dieser Bereich ist zu niedrigen Energien hin durch die Absorption der  $\gamma$ -Quanten in der Aluminiumdetektorkappe und in den bis zu 6 mm dicken Targets selbst eingeschränkt und nach oben hin durch die geringe Anzahl der  $\gamma$ -Quanten mit Energien oberhalb von zwei MeV begrenzt.

### 4.3.3 Messungen

Zum Auspacken erfolgte nach der Bestrahlung der Transport der Protonentargets zunächst nach Köln und von dort weiter nach Hannover. Dementsprechend fanden erste Messungen etwa 36 Stunden nach der Bestrahlung statt. Da sich die Anzahl der nach einer Bestrahlung zu messenden Proben auf bis zu 100 belief, war eine auf die einzelnen Nuklide hin optimierte Meßplanung zur Detektion möglichst aller Restkerne praktisch nicht möglich. So wurden zur Messung der unterschiedlichen Halbwertszeiten die Proben direkt nach der Ankunft, etwa zwei Wochen, vier bis sechs Wochen, drei Monate, ein halbes Jahr sowie ein bis zwei Jahre später gemessen [GL98A]. In jedem dieser Abschnitte wurden die Proben auf drei verschiedenen Detektoren gemessen, wodurch systematische Fehler bei der Bestimmung des Ansprechvermögens gegebenenfalls deutlich werden. Der angegebene Meßzyklus wurde auch auf die Neutronenproben angewendet.

Im Gegensatz zu den Protonenexperimenten war für die Neutronenbestrahlungen die Möglichkeit gegeben, die Folien direkt nach der Bestrahlung am Experimentort zu messen. So wurden Nuklide mit Halbwertszeiten bis hinunter zu 20 Minuten ( $^{11}\text{C}$ ) gemessen. In den folgenden zehn bis 18 Stunden Meßzeit am Ort wurden dann die Restkerne mit wenigen Stunden Halbwertszeit nachgewiesen. Die Targets wurden danach direkt nach Hannover transportiert.

Im Unterschied zu den Protonenexperimenten war die Anzahl der Proben auf etwa 20 pro Experiment beschränkt, so daß - zumindest für die Targets geringer Ordnungszahlen bis Kupfer - die Meßzeiten im Rahmen der Detektorkapazität auf eine Unsicherheit der Nettopeakflächen im Bereich von drei bis fünf Prozent für die aktuell zu messenden Nuklide abgestimmt wurden. Durch die geringen Aktivitäten ist der Meßzeitraum für die kurzlebigen Nuklide direkt nach der Bestrahlung begrenzt, so daß dann die Elementfolien (Kapitel 4.2.1) vorrangig gemessen wurden. Von den Kupfermonitorfolien zwischen diesen Elementtargets wurde daher aus Kapazitätsgründen zum Teil nur jede zweite auf die kurzlebigen Nuklide hin gemessen. Des weiteren wurde für diese auch auf die Detektion *aller* langlebigen Restkerne verzichtet, wenn dies unakzeptabel lange Meßzeiten bedeutet hätte.

### 4.3.4 Meßgeometrie

Zur Messung der Protonenproben wurde auf bewährte Verfahren [BO93] zurückgegriffen. So wurden sie in einem vertikalen Minimalabstand von 5 cm in einer hinsichtlich der Detektorkappe zentrierten Positionierung gemessen. Für die Messungen direkt nach der Bestrahlung wurden zum Teil auch Abstände von 10 oder 20 cm gewählt, um die durch die noch stark aktiven Proben verursachte Totzeit unterhalb von 10 % zu halten; Abbildung 4.6 zeigt die Meßgeometrie für diese Proben. Entsprechend der geringen Dicke und des gewählten Abstandes wird das Target als punktförmige Quelle behandelt. Das bedeutet für die Bestimmung des Ansprechvermögens des Detektors, daß dieses nur für den Mittelpunkt der Folie im jeweiligen vertikalen Abstand von der Detektorkappe bekannt sein muß. Das Ansprechvermögen über die Probendimension wird so als unabhängig von der Dicke des Targets und vom radialen Abstand von der Symmetrieachse betrachtet.

Im Gegensatz dazu war für die Neutronenproben die Wahl einer von der Protonengeometrie abweichenden Meßanordnung nötig. Um dies zu erläutern, wird für die Protonen- und Neutronenexperimente ein Vergleich der erzeugten Produktkerne mit der Aktivierungsgleichung (3.2) gegeben. Wie die Abschätzung in Tabelle 4.10 bei angenommenen gleichen Wirkungsquerschnitten  $\sigma$  zeigt, ist

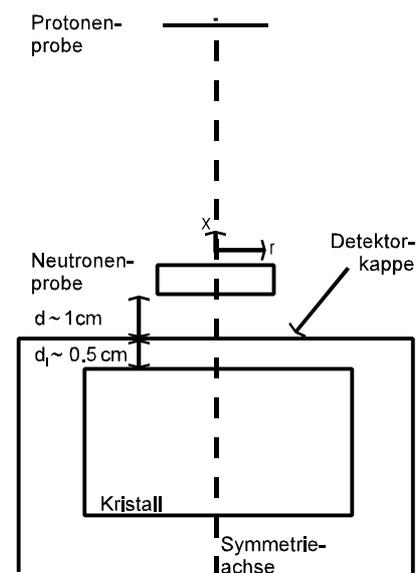


Abbildung 4.6 Schemazeichnung benutzter Meßgeometrien für die Protonen- und Neutronenproben.

trotz erhöhter Massen und Bestrahlungszeiten für die Neutronenbestrahlungen die Produktion je nach Halbwertszeit um bis zu einen Faktor 600 geringer. Die produzierten Aktivitäten am Ende der Bestrahlung liegen so im Bereich von etwa  $1 \cdot 10^5$  Bq.

Tabelle 4.10 Abschätzung der bei Protonen- (Index P) und Neutronenbestrahlungen (Index N) erzeugten Restkerne nach Gleichung (3.2) unter Annahme gleicher  $\sigma$ .

$\phi_N / \phi_P$	$\sim 1 \cdot 10^{-5}$		
$N_{TN} / N_{TP}$	$\sim 15 \text{ g} / 0.2 \text{ g}$	$\sim 75$	$\rightarrow \lambda_B \sim 3\text{h}; N_{BP} / N_{BN} \sim 600$
$t_{irrN} / t_{irrP}$	$\sim 60 \text{ h} / 3 \text{ h}$	$\sim 20$	$\lambda_B \sim 1\text{a}; N_{BP} / N_{BN} \sim 60$

Da möglichst alle Restkerne detektiert werden sollen, muß sich die Geometriewahl an der niedrigsten Aktivität orientieren. Würde man beispielsweise 5 Bq ( $I_\gamma = 1, E_\gamma = 830 \text{ keV}$ ) in der Protonengeometrie auf 1000 Impulse messen, so bräuchte man dazu etwa 20 h. Eine solch lange Meßzeit ist nicht akzeptabel, wenn man die geringe Anzahl von vier zur Verfügung stehenden Detektoren am Standort Am Kleinen Felde und die für jede Probe begrenzte Meßzeit bedenkt. Diese ist insbesondere während des Messzyklus direkt nach der Bestrahlung für die Nuklide mit Halbwertszeiten bis zu fünf Tagen beschränkt, zumal am TSL und am CYCLONE nur ein einziger Detektor für alle Proben zur Verfügung stand.

Als Kompromiß zwischen guter Zählstatistik und damit geringer Unsicherheit und Meßzeit wurden die Proben im Abstand von etwa einem Zentimeter von der Detektorkappe positioniert (Abbildung 4.6). Dadurch wird das Ansprechvermögen im Vergleich zur Protonengeometrie etwa um einen Faktor vier bis fünf erhöht, wodurch die Meßzeiten bei gleicher Peakstatistik entsprechend kleiner werden.

Neben den genannten Vorteilen bringt diese Meßgeometrie jedoch auch Erschwernisse bei der Auswertung der Messungen mit sich. Wie man in Abbildung 4.6 erkennt, kann die Neutronenprobe infolge des geringen Abstandes nicht mehr als punktförmig angesehen werden, sondern muß als Volumenquelle behandelt werden. Dadurch werden eine Reihe von Korrekturen bei der Auswertung nötig, die im folgenden beschrieben werden. Diese können die systematische Unsicherheit der Meßergebnisse erhöhen, so daß zum Schluß dieser Betrachtungen eine Qualitätskontrolle durchgeführt wird.

### 4.3.5 Bestimmung des Ansprechvermögens

#### 4.3.5.1 Das Ansprechvermögen für die Protonenproben

Für die als punktförmig angesehenen Targets der Protonenbestrahlungen erfolgte die energieabhängige Kalibrierung hinsichtlich des Ansprechvermögens mit punktförmigen Kalibrierpräparaten der PTB. Die Berechnung der Punkteffizienz  $\epsilon_p(E_\gamma)$  beschränkt sich somit darauf, die mit den Kalibrierpräparaten während der Meßzeit  $t_c$  aufgenommenen Nettopeakflächen NP auf die Referenzaktivität  $A_{ref}(t_{BoC})$  am Meßzeitpunkt nach

$$\epsilon_p(E_\gamma) = \frac{NP}{I_\gamma t_c} \cdot \frac{1}{A_{ref}(t_{BoC})} \quad (4.3)$$

zu beziehen. An die mit  $^{241}\text{Am}$ -,  $^{133}\text{Ba}$ -,  $^{57}\text{Co}$ -,  $^{54}\text{Mn}$ -,  $^{60}\text{Co}$ -,  $^{137}\text{Cs}$ -,  $^{152}\text{Eu}$ - und  $^{22}\text{Na}$ -Quellen aufgenommenen  $\epsilon_p(E_\gamma)$  wurde ein Fit nach Gray und Ahmad [GR85] der Form

$$\epsilon_p(E_\gamma) = \frac{1}{E_\gamma} \sum_{i=1}^8 a_i \left( \ln \frac{E_\gamma}{E_0} \right)^{i-1} \quad (4.4)$$

vorgenommen sowie zusätzlich dazu für die Energien größer als 200 keV ein auf doppelt-logarithmischer Skala linearer Fit. Da der Fit nach Gray und Ahmad für höhere Energien zu unphysikalischen

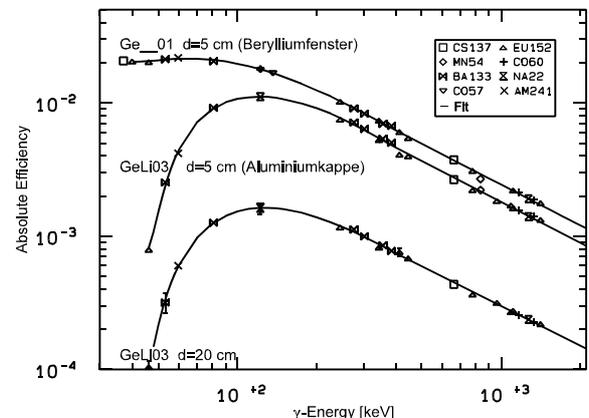


Abbildung 4.7 Energieabhängiges Nachweisvermögen für verschiedene Detektoren und Meßgeometrien mit Vertikalabständen d am ZSR.

Oszillationen neigt, wurde oberhalb von etwa 300 keV von einem geeigneten Schnittpunkt der doppeltlogarithmische Fit weiterverwendet. Abbildung 4.7 zeigt für verschiedene Geometrien und Detektoren die mit diesem Verfahren erhaltenen Efficiencies.

#### 4.3.5.2 Das Ansprechvermögen für die Neutronenproben

Im Gegensatz zu dem für die Protonenproben erprobten Verfahren zur Erstellung der Nachweiswahrscheinlichkeit müssen die Neutronenproben als Volumenquellen behandelt werden. Diese sind entsprechend der bestrahlten Targets zylindersymmetrisch und deren Positionierung ist derart, daß die Symmetrieachsen von Probe und Detektor zusammenfallen (Abbildung 4.6).

Die Volumenefficiency  $\epsilon_V$  ergibt sich aus dem Integral der Punktefficiency  $\epsilon_P$  über das Volumen der Probe, wobei die Selbstabsorption der  $\gamma$ -Quanten in der Probe im Integranden durch den exponentiellen Schwächungsfaktor  $\exp(-\mu \cdot s)$  berücksichtigt werden muß. Für diesen ist  $\mu = \mu(E_\gamma)$  der Absorptionskoeffizient für das Probenmaterial und  $s = s(x,r)$  die Strecke, die ein  $\gamma$ -Quant in der Probe zurücklegt. Die Definition von  $x$  und  $r$  ist den folgenden Integralen sowie Abbildung 4.6 zu entnehmen. Für Targets der Dicke  $h$  und des Radius  $R$  ergibt sich  $\epsilon_V$  für eine Position im Abstand  $d$  zur Detektorkappe also zu [DE88]

$$\epsilon_V(d, E_\gamma) = \frac{2\pi}{h\pi R^2} \int_d^{d+h} dx \int_0^R e^{-\mu(E_\gamma) \cdot s(x,r)} \epsilon_P(r, x, E_\gamma) r dr. \quad (4.5)$$

Zur Berechnung von  $\epsilon_V$  wurden die Integrale aus Gleichung (4.5) in der Form

$$\epsilon_V(d, E_\gamma) = \frac{2}{hR^2} \left( \frac{1 - e^{-\mu(E_\gamma)h}}{\mu(E_\gamma)h} \right) \cdot \epsilon_P(d, r=0, E_\gamma) \cdot \int_d^{d+h} f(x) dx \cdot \int_0^R g(r) r dr \quad (4.6)$$

geschrieben, wozu die folgenden Annahmen gemacht wurden:

- ◆ Die Integration für die Berechnung der Selbstabsorption kann von der für die Efficiencybestimmung separiert werden. Die Begründung dafür und die weitere Behandlung der Selbstabsorption erfolgt in Kapitel 4.3.6.2.
- ◆ Die radiale und vertikale Abhängigkeit der Efficiency über das Probenvolumen ist voneinander unabhängig, so daß die Integration faktorisiert in einen Faktor abhängig vom vertikalen Abstand von der Detektorkappe  $x$  und in einen Faktor abhängig vom radialen Abstand von der Detektorachse  $r$ . Zur Begründung wurden bereits in der Diplomarbeit von Kaftan [KA94] Radialprofile einzelner Energiepunkte  $E_\gamma$  für  $r$  bis zu 12 mm auf dem auch in dieser Arbeit benutzten Detektor GE\_NEU aufgenommen. Für vertikale Änderungen bis  $\Delta x = 4$  mm änderte sich die Form dieser Profile nicht.
- ◆ Die Energieabhängigkeit der Efficiency  $\epsilon_P$  ändert sich über das Volumen der Probe nicht. Um dies zu überprüfen wurden die  $^{152}\text{Eu}$ -Spektren an verschiedenen Positionen innerhalb der Probenmaße aufgenommen. Innerhalb einer Unsicherheit von bis zu drei Prozent ergaben sich keine Änderungen der Energieabhängigkeit. Insbesondere folgt daraus, daß die Funktionen  $f(x)$  und  $g(r)$  unabhängig von  $E_\gamma$  sind. Untersuchungen von Helmer [HE83] zur Abhängigkeit von  $g(r)$  von  $E_\gamma$  zeigen Abweichungen von der Konstanz für Energien unterhalb von 200 keV, die sich auf maximal etwa 4 % bei 100 keV belaufen. Dieser Effekt wurde vernachlässigt, da eine genaues Ausmessen dieser Energieabhängigkeit unter der Berücksichtigung der Größe der Korrektur in dieser Arbeit nicht möglich war. Denn für diesen Energiebereich können nur zwei  $\gamma$ -Linien der Standardpräparate sinnvoll<sup>2</sup> genutzt werden.

<sup>2</sup> Zwischen 100 und 200 keV stehen nur drei  $\gamma$ -Energien aus dem Standardpräparatsatz zur Verfügung. Der physikalische Effekt der echten Koinzidenzen (siehe dazu Kapitel 4.3.6.1) verhindert prinzipiell zusätzlich die Benutzung von Viellinienpräparaten, da bei veränderter Positionierung die Größe der Koinzidenz verändert wird und dies den zu beobachtenden Effekt überlagert.

Aus denselben Gründen kann die Abhängigkeit von  $f(x)$  von  $E_\gamma$  nicht gemessen werden. Abschätzungen aus Efficiencies für vertikale Abstände größer als 5 cm ergeben Abweichungen von der Konstanz von maximal etwa 3 % für  $E_\gamma$  zwischen 100 und 300 keV. Eine Bestimmung der Energieabhängigkeit für die relevanten Dicken  $h$  von maximal 6 mm ist in Anbetracht der Größe der zu erwartenden Effekte infolge der in Kapitel 4.3.6.1 beschriebenen Probleme zu ungenau und rechtfertigt auch nicht den Aufwand. Da die  $f(x)$  und  $g(r)$  maximale Abweichungen von der angenommenen Konstanz bei 100 keV zeigen, soll hier bereits darauf hingewiesen werden, daß bei der Auswertung hochenergetische Linien den niederenergetischen vorzuziehen sind.

Zur Durchführung der Volumenintegration nach Gleichung (4.6) wird im folgenden auf die Erstellung von  $f(x)$  und  $g(r)$  eingegangen.

#### 4.3.5.2.1 Die radiale Abhängigkeit der Efficiency

Die radiale Abhängigkeit des Ansprechvermögens, die Variation mit  $r$ , wurde mit den Einlinienpräparaten  $^{54}\text{Mn}$  oder  $^{137}\text{Cs}$  in Abständen von 2.5 oder 5 mm Schritten innerhalb des relevanten Radius für vier aufeinander senkrecht stehende Richtungen von der Geometrieachse aufgenommen. Die Aufnahme zeigt durch das Maximum für  $r=0$  cm, daß sich die Probe tatsächlich über dem Zentrum des Kristalls befindet. Lediglich für die beim NIR1 verwendete Geometrie zeigte sich, daß das Symmetriezentrum des Detektors etwa 7.5 mm rechts von dem der Probe lag.

Für alle anderen Detektoren stimmten die Werte für die verschiedenen Richtungen in der Regel gut überein. Daher wurden alle Daten gemeinsam nach

$$g(r) = e^{-(a+br)^2} \quad (4.7)$$

gefittet, was eine modifizierte Form des Ansatzes  $g(r) = \exp(-a \cdot r^2)$  von Kushelevski und Alfassi [KU75] darstellt. Als Beispiel dazu ist in Abbildung 4.8 das Radialprofil des Detektors NIR2 gezeigt. Die Integration nach Gleichung (4.6) ergab für die verwendeten Meßgeometrien Korrekturfaktoren im Bereich von zwei bis vier Prozent für die Proben mit Radius  $R = 1$  cm und fünf bis sechs Prozent für diejenigen mit  $R = 1.25$  cm.

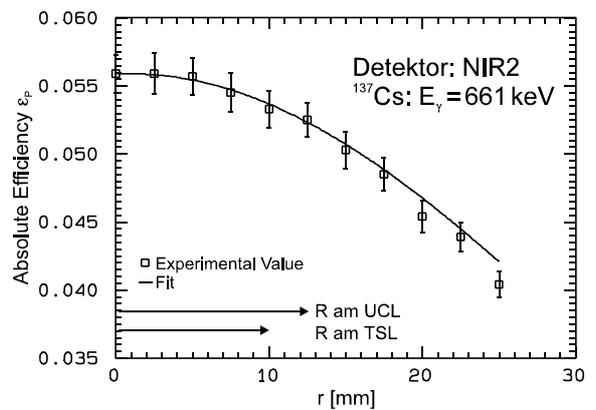


Abbildung 4.8 Radiale Abhängigkeit der Efficiency am Beispiel des Detektors NIR2 aufgenommen mit dem Präparat  $^{137}\text{Cs}$  für  $d = 1$  cm.

#### 4.3.5.2.2 Die Abhängigkeit der Efficiency senkrecht zur Detektorkappe

Die Änderung der Efficiency senkrecht zur Detektorkappe, also in Abhängigkeit von  $x$ , wurde exemplarisch am Detektor GELIHA aufgenommen (Abbildung 4.9). Es zeigt sich eine lineare Abhängigkeit, so daß für  $f(x)$  angesetzt wird:

$$f(x) = 1 - \left( 1 - \frac{\varepsilon(d+1\text{mm})}{\varepsilon(d)} \right) \cdot x \quad (4.8)$$

Für alle Detektoren wurde die Änderung mit  $d$  mit den Präparaten  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  und  $^{54}\text{Mn}$  in der Regel für  $\Delta d = 5\text{mm}$  aufgenommen und mit den Werten der vier  $\gamma$ -Linien der Mittelwert zur Bestimmung der Steigung gebildet. Die Integration nach Gleichung (4.6) liefert vertikale Korrekturfaktoren zwischen zwei Prozent ( $h = 1$  mm) und 14 % ( $h = 6$  mm).

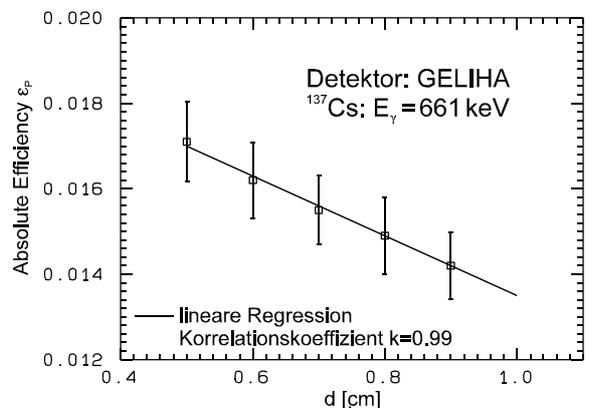


Abbildung 4.9 Abhängigkeit der Efficiency von  $x$  am Beispiel des Detektors GELIHA aufgenommen mit  $^{137}\text{Cs}$  für  $r = 0$  cm.

4.3.5.2.3 Die Abhängigkeit der Efficiency von der  $\gamma$ -Energie

Nimmt man für die Neutronengeometrie die Energieabhängigkeit des Ansprechvermögens auf, so bekommt man typischerweise keinen eindeutigen Verlauf der Efficiency wie im Falle der Protonengeometrie in Abbildung 4.7 sondern die Meßwerte streuen wie es in Abbildung 4.10 am Beispiel des Detektors NIR2 gezeigt ist. Die Größe dieser Streuung bei gleicher Meßgeometrie hängt zwar von der Kristallgröße des Detektors ab, sie tritt jedoch immer bei der Messung der Standardpräparate im Abstand von 1 cm von der Detektorkappe auf. Diese Verschiebung der Meßwerte wird durch den Effekt der echten Koinzidenzen verursacht, der in Kapitel 4.3.6.1 diskutiert wird, und tritt nur bei Viellinienpräparaten in Erscheinung. An dieser Stelle ist zunächst entscheidend, daß dieser Effekt bei den Einlinienpräparaten  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{137}\text{Cs}$  nicht auftritt und für  $^{57}\text{Co}$  vernachlässigt wird (siehe dazu Kapitel 4.3.7). Bei allen anderen Präparaten werden in der Regel die Zählraten vermindert, seltener auch erhöht (Abbildung 4.10).

Da mit dem Standardpräparatsatz aus diesem Grund keine Energieabhängigkeit der Efficiency für die Neutronengeometrie ausgemessen werden kann, wurde zur Erstellung des Nachweisvermögens das folgende Verfahren entwickelt. Zunächst wird von der linearen Variation der Efficiency für  $E_\gamma \geq 200$  keV auf doppeltlogarithmischem Maßstab ausgegangen. Zur Erstellung der Geraden in diesem Bereich bieten sich somit nur die zwei  $\gamma$ -Linien von  $^{54}\text{Mn}$  (834 keV) und  $^{137}\text{Cs}$  (661 keV) an. Da die beiden Linien jedoch nur 170 keV auseinanderliegen und auf  $E_\gamma = 200$  keV und  $E_\gamma = 2000$  keV extrapoliert werden muß, würde bereits ein geringer Fehler der aus den beiden Punkten bestimmten Geradensteigung große Abweichungen an den Randpunkten der Extrapolation verursachen. Zum Beispiel würde eine zweiprozentige Abweichung für den  $^{54}\text{Mn}$ -Punkt bereits eine 17 %ige für 2000 keV bedeuten.

Um diese Fehlerquelle zu vermeiden, wurde auf die Tatsache zurückgegriffen, daß sich das Verhältnis der Efficiencies für eine entfernte Geometrie mit  $d_{\text{far}} \geq 5$  cm und eine nähere mit Vertikalabstand  $d$ ,  $\epsilon_p(d_{\text{far}})/\epsilon_p(d)$ , für Energien zwischen 300 und 2000 keV nicht sehr stark ändert ( $\leq 10\%$ ) [DE79]. Dies wurde auch bei Verhältnissen  $\epsilon_p(d_{\text{far}})/\epsilon_p(d=5\text{cm})$  von Detektoren am ZSR beobachtet. Daher wurde die Fitgerade für  $E_\gamma \geq 300$  keV der Efficiency einer entfernten Geometrie, für die die Energieabhängigkeit problemlos bestimmt wurde, mit dem Mittelwert der zwei Verhältnisse  $\epsilon_p(d_{\text{far}}, E_\gamma = 661, 834 \text{ keV})/\epsilon_p(d=1 \text{ cm}, E_\gamma = 661, 834 \text{ keV})$  auf die Neutronengeometrie umskaliert.

Anhand der durch dieses Verfahren bereitgestellten Werte oberhalb von 300 keV sowie der  $^{57}\text{Co}$ -Efficiencies bei 122 keV und 135 keV wurde nun ein Grayfit nach Gleichung (4.4) durchgeführt, der das Ansprechvermögen im unteren Energiebereich vervollständigt. Um einen besseren Fit zu erhalten, wurde dazu gegebenenfalls ein aus dem Verhältnis  $\epsilon_p(d_{\text{far}})/\epsilon_p(d=1\text{cm})$  abgeschätzter Wert unterhalb von 100 keV hinzugefügt. Dieser Punkt bestimmt im wesentlichen den Fit unterhalb von 100 keV und vermeidet dort unphysikalische Oszillationen.

Die so erstellte Efficiency (Abbildung 4.10) wurde zur Aktivitätsbestimmung im Bereich 100 - 2000 keV genutzt, für die im nächsten Kapitel beschriebenen Korrekturen aber auch außerhalb dieses Bereiches. Die Übereinstimmung der Efficiencies für die verschiedenen Detektoren wurde an Einliniennuklidern der bestrahlten Neutronentargets überprüft, für die aus den Nettopeakflächen direkt - ohne zusätzliche Korrektur für das Auftreten echter Koinzidenzen - Aktivitäten bestimmt wurden. Für die einen großen Energiebereich umspannenden  $\gamma$ -Linien der Energien 159 keV ( $^{47}\text{Sc}$ ), 279 keV ( $^{203}\text{Hg}$ ), 320 keV ( $^{51}\text{Cr}$ ) und 834 keV ( $^{54}\text{Mn}$ ) lagen die Aktivitäten innerhalb von etwa 5 % beieinander.

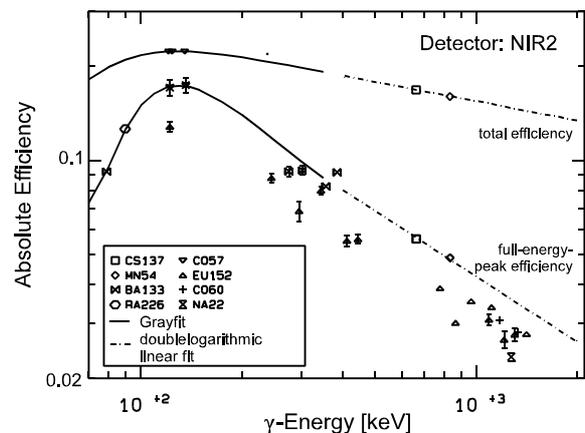


Abbildung 4.10 Ansprechvermögen des Detektors NIR2 mit den gemessenen Werten aus den Standardpräparaten und mit der mit dem im Text beschriebenen Verfahren erhaltenen Efficiency. Auf die totale Efficiency wird in Kapitel 4.3.6.1 eingegangen.

### 4.3.6 Weitere Korrekturen für die mit Neutronen bestrahlten Targets

Mit der Efficiency  $\epsilon_v$  wird für die Neutronenfolien nach Gleichung (3.4) aus der Nettopeakfläche die Aktivität zum Anfang der Messung berechnet. Die Aktivität muß jedoch noch für bisher nicht berücksichtigte Effekte bei der Messung korrigiert werden. Das sind die bereits erwähnten Effekte der echten Koinzidenzen und der Selbstabsorption, die im Falle der Neutronentargets infolge ihrer Meßgeometrie und des Vorliegens als Volumenproben einer besonderen Behandlung bedürfen.

#### 4.3.6.1 Die Korrektur echter Koinzidenzen

Zerfällt das Nuklid  $N_1$  so wird das Tochternuklid  $N_2$  im allgemeinen in einem angeregten Zustand produziert.  $N_2$  wiederum zerfällt in den Grundzustand, indem zumeist mehrere  $\gamma$ -Quanten zeitlich hintereinander in einer sogenannten Kaskade emittiert werden. Wenn im Laufe eines Kaskadenzerfalles innerhalb eines Niveauschemas während der Mikrosekunden, die die Elektronik für die Verarbeitung eines Impulses benötigt, mehrere  $\gamma$ -Quanten dieser Kaskade sozusagen gleichzeitig im Detektor registriert werden, treten echte Koinzidenzen auf.

Dadurch kommt es zum einen zur Verminderung einer Nettopeakfläche, wenn in einer Kaskade dem zu registrierenden  $\gamma$ -Quant vorausgehende oder nachfolgende  $\gamma$ -Quanten gleichzeitig nachgewiesen werden. Zum Beispiel tritt dies in Abbildung 4.11 für  $\gamma_9$  auf, das durch  $\gamma_5$  und  $\gamma_3$  derart koinzident ist. Zum anderen wird eine Nettopeakfläche erhöht, wenn zwischen den Niveaus der Zerfallsenergie nicht nur ein direkter Zerfall, sondern auch ein Kaskadenzerfall auftritt. Dies ist nach Abbildung 4.11 für das Photon  $\gamma_6$  der Fall durch Summation der Quanten  $\gamma_4$  und  $\gamma_8$ .

Der mathematische Formalismus zur Korrektur solcher Effekte sei am einfachen Beispiel der Koinzidenz von  $\gamma_3$  mit  $\gamma_9$  erklärt. Würde eine Probe der Aktivität  $A$  nur das Quant  $\gamma_3$  mit Entkommwahrscheinlichkeit  $I_3$  emittieren, so würde sich in der Meßzeit  $t_M$  die Nettopeakfläche  $NP_3$  zu  $NP_3 = A \cdot I_3 \cdot \epsilon_3 \cdot t_M$  ergeben. Wird jedoch gleichzeitig mit der Abgabe der gesamten Energie von  $\gamma_3$  durch  $\gamma_9$  eine beliebige Energie ( $E \leq E_9$ ) im Kristall deponiert, so wird die Nettopeakfläche von  $\gamma_3$  vermindert.

Die Wahrscheinlichkeit für ein solches Summationsereignis ist gleich dem Produkt aus der Liniennachweiswahrscheinlichkeit  $\epsilon_3$  mit der Wahrscheinlichkeit, daß  $\gamma_9$  im Kristall einen beliebigen Teil seiner Energie abgibt; diese Nachweiswahrscheinlichkeit wird als totale Efficiency  $\epsilon_T$  bezeichnet. Die Nettopeakfläche für das mit  $\gamma_9$  koinzidente  $\gamma_3$ -Quant ergibt sich somit zu  $NP'_3 = A \cdot I_3 \cdot \epsilon_3 \cdot t_M - A \cdot I_3 \cdot \epsilon_3 \cdot \epsilon_T \cdot t_M = A \cdot t_M \cdot I_3 \cdot \epsilon_3 \cdot (1 - \epsilon_T)$  und man erhält den Korrekturfaktor  $NP_3/NP'_3 = 1/(1 - \epsilon_T)$ . Analog zu dieser Überlegung werden auch alle anderen Koinzidenzen behandelt [AN72, DE90].

Wie das Beispiel zeigt, ist die Größe der Korrekturen sowohl von der totalen als auch von der Liniennachweiswahrscheinlichkeit abhängig. Ob für die in dieser Arbeit benutzten Meßgeometrien echte Koinzidenzen überhaupt zu berücksichtigen sind, beantwortet Abbildung 4.10. Diese zeigt, daß die Effizienzpunkte der Nuklide, die Kaskadenzerfall zeigen ( $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ), durch die echten Koinzidenzen von denen der Einliniennuklide ( $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) nicht unerheblich abweichen. Zur Korrektur dieser Effekte für die Messungen der Bestrahlungsproben wurde daher auf den von Andreev et al. [AN72] aufgestellten allgemeinen, auf beliebige Zerfallsschemata anwendbaren Formalismus zurückgegriffen. Die rekursiven Gleichungen seiner Arbeit wurden in dieser Arbeit in das Programm KOINZ umgesetzt, das sich zwanglos in den Gang der am ZSR üblichen Auswertung einfügt (Kapitel 4.3.8).

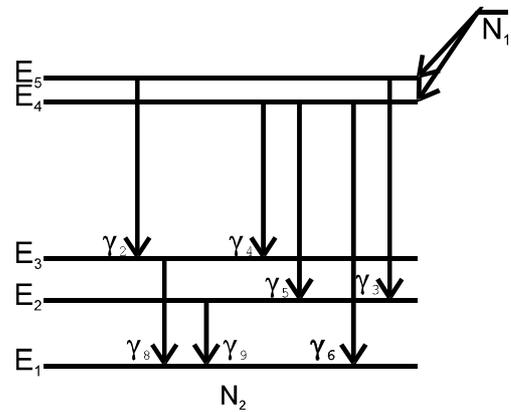


Abbildung 4.11 Niveauschema eines Nuklides  $N_2$ , dessen Niveaus durch Zerfall des Nuklides  $N_1$  bevölkert werden. Eingezeichnet sind die Energien  $E_i$  und die  $\gamma$ -Quanten  $\gamma_i$ , die beim Zerfall auftreten.

Zur Korrektur wird das vollständige Zerfallsschema eines jeden Nuklides mit den zugehörigen Entkommwahrscheinlichkeiten benötigt. Zur automatischen Extraktion dieser Daten dient das Programm PENDF2KO, das aus den im ENSDF-Standardformat [TU87] vorliegenden Zerfallsdaten die Eingabedatei NUK.IN für KOINZ erzeugt. Mit den erstellten Programmen wurde zum ersten Mal im Rahmen der Arbeiten am ZSR die Korrektur echter Koinzidenzen vollständig behandelt und in einfacher Art und Weise ermöglicht. Der Formalismus zur Korrektur und der Gebrauch der Programme zur Koinzidenzkorrektur sind in einem ZSR-internen Umdruck ausführlich beschrieben [NE97A].

Wie das oben besprochene Beispiel zeigt, wird für die Korrektur die totale Nachweiswahrscheinlichkeit  $\epsilon_T$  benötigt. Eine Bestimmung dieser kann auf experimentellen und theoretischem Wege erfolgen. Theoretisch berechnet man die Absorption der  $\gamma$ -Quanten im Germanium für die entsprechende Geometrieordnung, für die dann der vertikale Abstand der Probe zum Kristall sowie Radius und Länge des Kristalls genau bekannt sein müssen [DE90]. Da diese Angaben für die in dieser Arbeit verwendeten Detektoren nicht vorhanden waren, wurde  $\epsilon_T$  auf experimentellen Wege ermittelt.

Dazu sind generell zwei Beiträge zu berücksichtigen. Zum einen die gemessene Anzahl aller Impulse eines Spektrums und zum anderen die Impulse, der durch die Elektronikeinstellung nicht mehr im Spektrum aufgenommenen niederenergetischen Energien. Letztere wurden durch Extrapolation des gemessenen niederenergetischen Spektrums erhalten. Für die Einlinienpräparate ( $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) ergibt sich  $\epsilon_T$ , indem in Gleichung (4.3) anstatt NP die Summe beider Impulsbeiträge eingesetzt wird. Auch Präparate mit zwei  $\gamma$ -Linien ( $^{57}\text{Co}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ) wurden unter Gebrauch gesonderter Gleichungen [DE90, DE80] verwendet. Insbesondere die Spektren von  $^{57}\text{Co}$  sind jedoch nur eingeschränkt zur Berechnung von  $\epsilon_T$  zu benutzen, da der auch bei abgeschirmten Detektoren zu berücksichtigende hohe Comptonuntergrund der Untergrundnuklide im zu betrachtenden Energiebereich bei 120 keV nicht zu vernachlässigen ist. Ein kanalweiser Untergrundabzug führte nur teilweise zu befriedigenden Ergebnissen.

In Abbildung 4.10 ist als Ergebnis exemplarisch die totale Efficiency für den Detektor NIR2 gezeigt, für die an die experimentellen Werte oberhalb von etwa 200 keV ein linearer Fit auf doppeltlogarithmischer Skala und unterhalb ein Grayfit [GR85] vorgenommen wurde. Im Vergleich zu der Linienefficiency variiert das totale Nachweisvermögen sehr viel geringer: nur um etwa einen Faktor 1.7 zwischen 2000 keV und dem Maximum bei etwa 150 keV. Abweichungen der Meßwerte von den wahren Werten bewirken daher bei Extrapolation an den Randpunkten keine so große Unsicherheiten wie bei der Full-Energy-Peak Efficiency. Neben dieser Unsicherheit der Bestimmung der Geraden auf doppelt-logarithmischer Skala trägt die erwähnte Extrapolation für die niedrigen Energien zur Unsicherheit von  $\epsilon_T$  bei.

Eine Überprüfung der mit den Punktpräparaten erstellten  $\epsilon_T$  erfolgte direkt mit den Viellinienstandardpräparaten, indem für ihre Messungen die beschriebene Koinzidenzkorrektur angewandt wurde und die korrigierten Aktivitäten mit den Referenzaktivitäten verglichen wurden. Bei Korrekturen von bis zu 15 % war die Übereinstimmung für die Präparate mit den einfachen Zerfallsschemata wie  $^{60}\text{Co}$  und  $^{22}\text{Na}$  besser als 5 %, für  $^{133}\text{Ba}$  und  $^{152}\text{Eu}$  besser als 12 %. Die schlechtere Übereinstimmung für  $^{133}\text{Ba}$  und  $^{152}\text{Eu}$  könnte darauf zurückzuführen sein, daß auch auf Efficiencywerte unterhalb von 100 keV zurückgegriffen werden mußte, für die die Ansprechvermögen nicht optimal bestimmt wurden.

Im Falle der Neutronenproben müssen die Koinzidenzen jedoch nicht auf Punktproben angewendet werden, sondern auf Volumenproben. Dafür geht der Korrekturfaktor des obigen Beispiels in

$$NP_3/NP'_3 = 1 - \left( \int_{Probe} \epsilon_{P,3}(\mathbf{r}) e^{-\mu(E_3)s(\mathbf{r})} \epsilon_{T9}(\mathbf{r}) e^{-\mu(E_9)s(\mathbf{r})} dV \right) \left( \int_{Probe} \epsilon_{P,3}(\mathbf{r}) e^{-\mu(E_3)s(\mathbf{r})} dV \right)^{-1} \quad (4.9)$$

über [DE88], wodurch die Korrekturgleichungen recht kompliziert werden. Eine rein theoretische Berechnung der Integrale ist infolge der Unkenntnis der Geometrie (siehe oben) nicht möglich. Eine experimentelle Untersuchung würde die Messung von radioaktiven Standardpräparaten für eine das Probenvolumen umfassende Ortsmatrix erfordern und somit die Messung von Standardpunktpräparaten mit verschiedenen Absorberdicken des Targetmaterials zwischen Standard und Detektor. Solche Messungen haben eine erhöhte Unsicherheit durch Streueffekte der  $\gamma$ -Quanten am Absorber und dadurch, daß wegen der als Ringpräparate vorliegenden Standards die Aktivität nicht direkt vor dem Absorber positioniert werden kann. Daher wurden für die Koinzidenzkorrektur der Volumenproben die

mit den Punktpräparaten gemessenen  $\epsilon_T$  und  $\epsilon_P$  mit den in Kapitel 4.3.5.2.1 und 4.3.5.2.2 beschriebenen Methoden auf das Volumen der Bestrahlungstargets korrigiert und diese in die Korrekturgleichungen nach [AN72] eingesetzt. Daß dieses Verfahren richtige Ergebnisse liefert, zeigen die Qualitätskontrollen in Kapitel 4.3.7.

Um einen Eindruck von der Größe der Koinzidenzkorrekturen zu bekommen, sind in Abbildung 4.12 für Nuklide, für die für mehrere Linien Korrekturen durchgeführt wurden, die Verhältnisse der fehlergewichteten Mittelwerte der Aktivitäten der einzelnen Linien zum Mittelwert aus allen Linien gegenüber der Größe der Koinzidenzkorrektur aufgetragen. Für die Korrekturfaktoren wurden hier nur die der Detektoren GE\_NEU und GE\_UPP ( $^{104g}\text{Ag}$ ) aufgetragen, um die relativen Unterschiede für ein Nuklid nicht durch die Mittelwertbildung der Korrekturfaktoren der einzelnen Detektoren zu verwischen.

Die Korrekturen bewegen sich für diese Nuklide abhängig vom jeweiligen Nuklid zwischen 0 % und 38 %. Häufig sind dabei für die Linien eines Nuklides die Korrekturen innerhalb weniger Prozent gleich ( $^{110m}\text{Ag}$ ). Für diese, aber auch für die Nuklide, für die sich stärker variierende Korrekturfaktoren ergeben ( $^{106m}\text{Ag}$ ,  $^{105g}\text{Ag}$ ), stimmen die Aktivitäten aus den einzelnen Linien innerhalb von 5 % mit dem Mittelwert aus allen Linien überein. Durch die Koinzidenzkorrektur wurde die Übereinstimmung der Linien untereinander verbessert. Dies zeigen zum Beispiel die Ergebnisse für das Nuklid  $^{106m}\text{Ag}$ , für das nach der Korrektur, die sich für die Linien um bis zu zehn Prozent voneinander unterschied, die Aktivitäten der einzelnen Linien eine maximale Abweichung untereinander von 5.8 % aufweisen.

Die Aktivitäten konnten dann nicht korrigiert werden, wenn in den relevanten Kaskaden des zugehörigen Übergangs  $\gamma$ -Quanten auftreten, deren Energien außerhalb des Geltungsbereiches der totalen Efficiency ( $\approx 100 - 2000$  keV) liegen. Da dies die auszuwertenden Linien zum Teil sehr einschränkt, wurden die totalen Efficiencies auch auf 2300 keV und auf Werte kleiner als 100 keV extrapoliert. Für die Linien, für die Efficiencywerte in diesen Randbereichen zur Korrektur herangezogen wurden, wurden keine stark systematischen Abweichungen zu anderen Linien beobachtet. Trotzdem wird die Unsicherheit durch ein solches Vorgehen erhöht, was auch der obige Vergleich für die Standardpräparate zeigt.

#### 4.3.6.2 Die Korrektur der Selbstabsorption

Durch die Wechselwirkung der  $\gamma$ -Quanten mit dem Probenmaterial selbst wird ein Teil der emittierten Quanten schon im Target absorbiert. Diese Selbstabsorption wurde mit dem Faktor  $\exp\{-\mu(E_\gamma) \cdot s(x,r)\}$  bereits in Gleichung (4.5) berücksichtigt. Zur Einbeziehung dieses Faktors in die Berechnungen muß zunächst  $s(x,r)$  quantifiziert werden. Prinzipiell hängt  $s(x,r)$  vom Ort im Kristall ab, an dem das  $\gamma$ -Quant wechselwirkt. Für ausgedehnte Quellen läßt sich jedoch das Konzept eines fiktiven Punktdetektors einführen, der einen vertikalen Abstand  $d_t$  von der Probe hat.

$d_t$  setzt sich zusammen aus dem Abstand der Probe zur Detektorkappe  $d \geq 1$  cm, dem Abstand des Kristalls zur Detektorkappe  $d_i \sim 0.5$  cm (Abbildung 4.6) und einer Länge im Kristall  $d_c(E_\gamma) \sim 2$  cm [DE88], die die effektive Wechselwirkungslänge hinter der realen Kristalloberfläche beschreibt. Die Strecke  $s$  durch die Probe ergibt sich dann zu  $s = x \cdot (x + d_t)^{-1} \cdot (r^2 + (d_t + x)^2)^{1/2}$ .

Zur Berechnung von  $\epsilon_v$  könnte man zunächst Gleichung (4.5) numerisch unter Anwendung von Gleichung (4.7) und (4.8) integrieren. Da  $d_t$  jedoch nicht exakt für die einzelnen Detektoren bekannt ist und

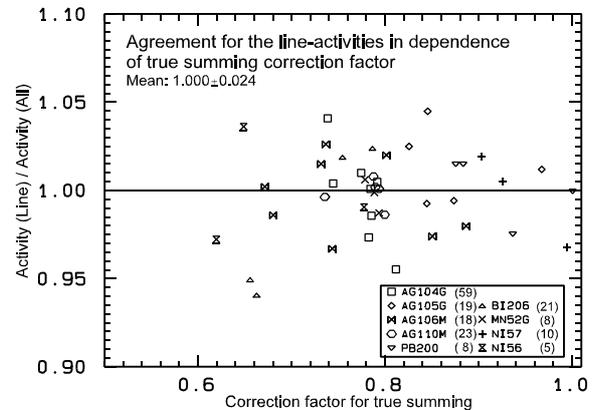


Abbildung 4.12 Verhältnis der fehlergewichteten Mittelwerte der Aktivitäten bestimmt aus den einzelnen Linien und aus allen Linien. Der Übersicht halber sind die Unsicherheiten zum Vergleich der Linien-Aktivitäten eines Nuklides untereinander weggelassen, die etwa 8.5 % betragen. Die Klammern hinter den Nukliden geben die Anzahl der Niveaus für das jeweilige Zerfallsschema an.

nur abgeschätzt wird, ergibt sich eine Unsicherheit des Integrals - abhängig von der  $\gamma$ -Energie - von maximal 4 % setzt man für  $d_i$  einmal 2.0 cm und einmal 3.5 cm an. Vergleicht man darüber hinaus das Integral mit  $s=x$  und  $s=x \cdot (x+d_i)^{-1} \cdot (r^2+(d_i+x)^2)^{1/2}$ ; so bekommt man für  $d_i = 3.5$  cm und für typische Probenparameter für  $\gamma$ -Energien oberhalb von 200 keV maximale Abweichungen von 2.3 %. Infolge dieser geringen Diskrepanzen für diese zwei Berechnungsarten und der Unkenntnis von  $d_i$  wurde daher  $s=x$  gewählt.

Bei der praktischen Auswertung wird mit dem Programm IDENT-MG mit der Näherung  $s=x$  die Berechnung der Absorption in Gleichung (4.5) von der Volumenabhängigkeit entkoppelt. Zur Erläuterung dazu wird das Verhältnis  $k$

$$k = \left[ \frac{1}{h} \int_0^h (1-ax)e^{-\mu x} dx \right]^{-1} \cdot \left[ \frac{1}{h^2} \left( \int_0^h e^{-\mu x} dx \right) \cdot \left( \int_0^h (1-ax) dx \right) \right] \quad \text{mit} \quad a = \left( 1 - \frac{\varepsilon(d+1\text{mm})}{\varepsilon(d)} \right) \quad (4.10)$$

betrachtet. IDENT-MG korrigiert die Aktivitäten mit dem Korrekturfaktor  $r_{\text{abs}} = (1 - \exp(-\mu h)) / \mu h$ , das Resultat des ersten Integrals der zweiten eckigen Klammer in Gleichung (4.10). Die Volumenabhängigkeit wird mit dem zweiten Integral derselben Klammer direkt bei der Efficiency berücksichtigt.

Der Unterschied zwischen der entkoppelten Berechnungsart und der korrekten Methode, die in der ersten eckigen Klammer von Gleichung (4.10) angegeben ist, ist in Abbildung 4.13 aufgetragen. Da für die Proben mit  $Z$  bis 14 sowie für die 2 mm dicken Kupferproben die Abweichungen unterhalb eines Prozents liegen, wurde für diese die entkoppelte Berechnungsmethode gewählt. Für alle anderen Proben wurden die aus IDENT-MG resultierenden Aktivitäten mit  $k$  korrigiert, wozu das Programm ABSKORR geschrieben wurde.

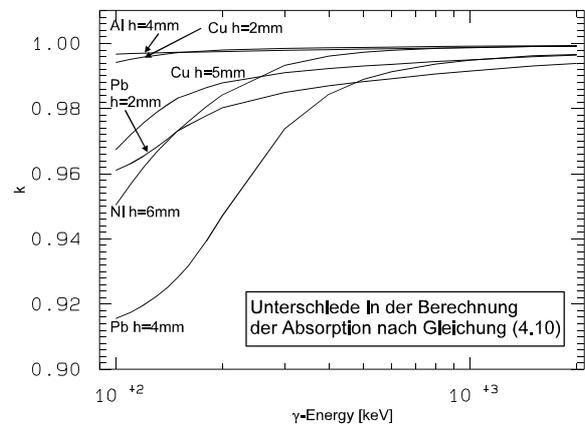


Abbildung 4.13 Unterschiede in der Absorptionsberechnung nach Gleichung (4.10) für verschiedene Probendicken  $h$  und  $R = 1$  cm.

Für die niederenergetischen  $\gamma$ -Energien im Bereich bis 200 keV sind die Unsicherheiten und Korrekturen am größten. Die Unsicherheit der Absorptionsberechnung wird im Rahmen der Analyse der Unsicherheiten mit 4 % berücksichtigt. Soweit möglich wurden die niederenergetischen Linien nicht zur Auswertung herangezogen. Wegen des niedrigen  $k$  und der starken Absorption im niederenergetischem Bereich wird für Blei daher nur ein maximale Dicke von 2 mm empfohlen -  $\gamma$ -Quanten mit 135 keV werden in Bleiprobe mit  $h = 4$  mm zu 92 % absorbiert. Dies stellt einen Kompromiß zwischen Absorption und dem Wunsch nach möglichst vielen Targetkernen dar.

Zur Berechnung der Selbstabsorption wurde am ZSR bisher auf die von Storm und Israel [ST70] angegebenen Koeffizienten zurückgegriffen. Während dieser Arbeit wurden die Absorptionsberechnungen jedoch auf die Benutzung der neueren Kompilation von Schwächungskoeffizienten von Hubbel und Seltzer [HU95] umgestellt. Dazu wurden die mit dem Programm XCOM [BE87] erstellten Koeffizienten „Total attenuation without coherent scattering“ mit dem Programm NEWABS in das ZSR-interne Format der Datei ABSORP.DAT umgewandelt. Lediglich die Ergebnisse des Experimentes TEST basieren noch auf den Koeffizienten von Storm und Israel.

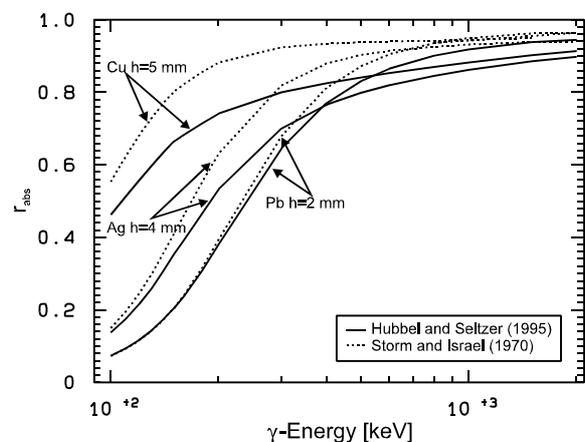


Abbildung 4.14 Berechnung der Selbstabsorption in einigen Targets typischer Geometrien ( $R = 1$  cm) mit den Daten von Hubbel und Seltzer [HU95] sowie von Storm und Israel [ST70].

Abbildung 4.14 zeigt die Berechnung von  $r_{\text{abs}}$  unter Anwendung der Daten von Storm und Israel sowie von Hubbel und Seltzer. Zwischen beiden Datensätzen ergeben sich Unterschiede bis zu 10 %, wobei die Absorption nach Hubbel und Seltzer für die angegebenen Probenparameter jeweils größer ist. Da die Absorptionskorrekturen insbesondere für die Energien unterhalb von 400 keV gravierend sind, sind genaue Schwächungsdaten als Eingabe zur Absorptionsberechnung sehr wichtig. Sollten neue Datensätze zur Verfügung stehen, sollte daher die Änderung in den Absorptionsrechnungen überprüft werden.

Inwieweit sich Fehler in den Absorptionskoeffizienten sowie die beschriebenen gemachten Annahmen zur Durchführung der Berechnung systematisch falsch auf die Korrekturen auswirken, läßt sich schwer beurteilen. Eine Methode zur Bewertung der Korrekturen ist, die Aktivitäten in Abhängigkeit von  $r_{\text{abs}}$  beziehungsweise der  $\gamma$ -Energie zu betrachten. Jede in eine Richtung zeigende Tendenz einer solchen Auftragung außerhalb der Unsicherheit deutet auf eine Über- oder Unterschätzung der Absorption hin. Diese Methode hängt jedoch entscheidend davon ab, Nuklide mit vielen  $\gamma$ -Quanten in einem breiten Energiefenster in den Bestrahlungsproben vorzufinden.

In Abbildung 4.15 sind für einige Nuklide, die - wenn auch nur beschränkt - dieser Anforderung genügen, die Linienaktivitäten normiert auf die Aktivität mit dem größten  $r_{\text{abs}}$  - das heißt, der geringsten Korrektur - aus den Blei-, Silber- und Nickeltargets aufgetragen. Da die meisten Aktivitäten eines Nuklides innerhalb der Unsicherheiten übereinstimmen, wird kein eindeutiger Hinweis auf einen systematischen Fehler gefunden.

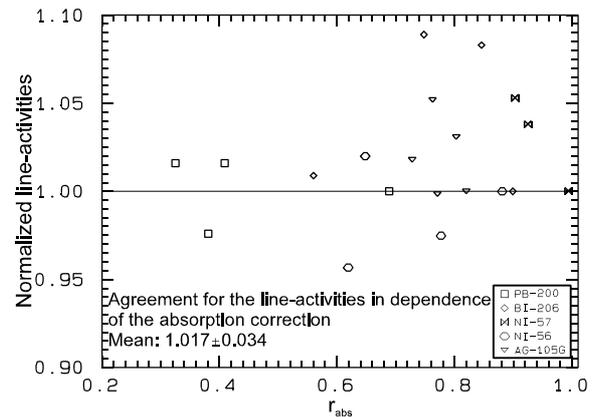


Abbildung 4.15 Fehlergewichtete Mittelwerte der Aktivitäten aus den einzelnen Linien normiert auf die Aktivität der Linie mit der geringsten Korrektur. Der Übersicht halber sind die Unsicherheiten zum Vergleich der Linien-Aktivitäten eines Nuklides untereinander weggelassen, die etwa 8.5 % betragen.

### 4.3.7 Qualitätssicherung

Wie in den vorangegangenen Kapiteln beschrieben wurde, wurden erhebliche Korrekturen an den gemessenen Nettopeakflächen zur Bestimmung der Aktivität eines Nuklides vorgenommen. Ein zentrales Anliegen dieser Arbeit war es daher, die Qualität der Aktivitäten sicherzustellen.

Eine Überprüfung der Aktivitäten dieser Arbeit mit einer völlig unabhängigen Methode erfolgte mit Hilfe der Bestrahlung am PSI. Wie in Kapitel 4.2.4 beschrieben wurde von der PTB direkt hinter unseren Targets eine Silberscheibe mit denselben Maßen bestrahlt. Diese Silberscheibe wurde an der PTB  $\gamma$ -spektrometrisch auf das Nuklid  $^{105\text{g}}\text{Ag}$  hin untersucht, wobei eine gänzlich andere Meß- und Korrekturmethode als in dieser Arbeit angewendet wurde.

Eine im Vergleich zu der Bestrahlungsprobe mindestens um einen Faktor 20 stärker aktivierte Silberprobe desselben Maßes diente dazu als Kalibrierquelle. Diese wurde in  $d = 19$  cm und in der Meßgeometrie mit  $d = 1.5$  cm von der Detektorkappe entfernt positioniert. Für die Messung der  $^{105\text{g}}\text{Ag}$ -Aktivität in der entfernten Geometrie wurden die Absorptionskorrekturen sowie die Volumenabhängigkeit der Efficiency mit hoher Genauigkeit bestimmt. Die Messung der aktiven  $^{105\text{g}}\text{Ag}$ -Quelle in der nahen Geometrie liefert dann die Efficiency für die einzelnen  $^{105\text{g}}\text{Ag}$ -Linien, die die Koinzidenz-, Absorptions- und Volumenkorrekturen bereits beinhaltet und die eine Unsicherheit von besser als 3 % hat.

Tabelle 4.11 gibt die  $^{105\text{g}}\text{Ag}$ -Aktivitäten in den PTB-Targets sowie in denen dieser Arbeit an, wobei für letztere zusätzlich die vorgenommenen Korrekturen eingetragen sind. Die Werte dieser Arbeit liegen gegenüber den PTB-Aktivitäten im Mittel um 5 % höher, stimmen jedoch innerhalb der Unsicherheitsgrenzen miteinander überein. Die genaue Ursache eines möglichen Offsets abzuklären, war infolge der Vielzahl der in die Auswertungen eingehenden Parameter nicht möglich. Berücksichtigt man jedoch die Größe der Korrekturen, die insgesamt bis zu 30 % betragen, so ist das Ergebnis als gut anzusehen.

Tabelle 4.11 <sup>105g</sup>Ag-Aktivitäten für die Silberfolien der Experimente PSIN01 und -02, die an der PTB [SC98B] und am ZSR gemessen wurden.

Experiment	A(t <sub>EOI</sub> )-PTB [Bq/g]	A(t <sub>EOI</sub> )-ZSR [Bq/g]	Korrekturen für die Bestimmung von A(t <sub>EOI</sub> )-ZSR
PSIN01	4.87±0.10	5.10±0.55	Selbstabsorption 5-8 % echte Koinzidenzen 0-16 %
PSIN02	5.59±0.17	5.89±0.60	radiale Volumenabhängigkeit 5 % vertikale Volumenabhängigkeit 2 %

Eine zweite Überprüfung der Aktivitäten wurde derart vorgenommen, daß die Resultate der Meßgeometrie d = 1 cm mit den Aktivitäten verglichen wurden, die durch zusätzliche Messungen auf den Detektoren GELIU4 und BENNO in einem Abstand von d = 10 cm von der Detektorkappe erhalten wurden. Für diese Messungen entfallen die Koinzidenz- und radialen Volumenkorrekturen und die vertikale Volumenkorrektur fällt um einen Faktor zwei bis drei geringer aus als für die Nahgeometrie. Für diese Kontrolle wurden die Eisen-, Kobalt-, Nickel-, Kupfer-, Silber- und Bleitargets des Experimentes UPPN09 herangezogen. Abbildung 4.16 zeigt die Verhältnisse der bei d = 1 cm und d = 10 cm gemessenen Aktivitäten.

Für die Produkte der leichten Targetelemente bis zum Kupfer ergibt sich eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse beider Meßgeometrien innerhalb von 5 %. Nuklide, für die keine Koinzidenzkorrekturen nötig waren (<sup>51</sup>Cr, <sup>54</sup>Mn und <sup>57</sup>Co), zeigen das gleiche Verhalten wie die mit Korrekturen. Die Annahme, daß die Koinzidenzen für <sup>57</sup>Co vernachlässigbar sind, wird hier im Rahmen der 5 % Unsicherheit bestätigt. Würde bei der Efficiencyaufnahme mit dem Standardpräparat eine Koinzidenz auftreten und ist die Koinzidenz bei der Targetmessung infolge der Absorption des 15 KeV-Quants zu vernachlässigen, so würde man im Gegensatz zum Ergebnis in Abbildung 4.16 eine erhöhte <sup>57</sup>Co-Aktivität erwarten, da die Auswertung der Probenmessung vorwiegend mit der 121 keV-Linie erfolgte. Echte Koinzidenzen erklären eine mögliche systematische Unterschätzung der <sup>57</sup>Co-Aktivität in Abbildung 4.16 somit nicht.

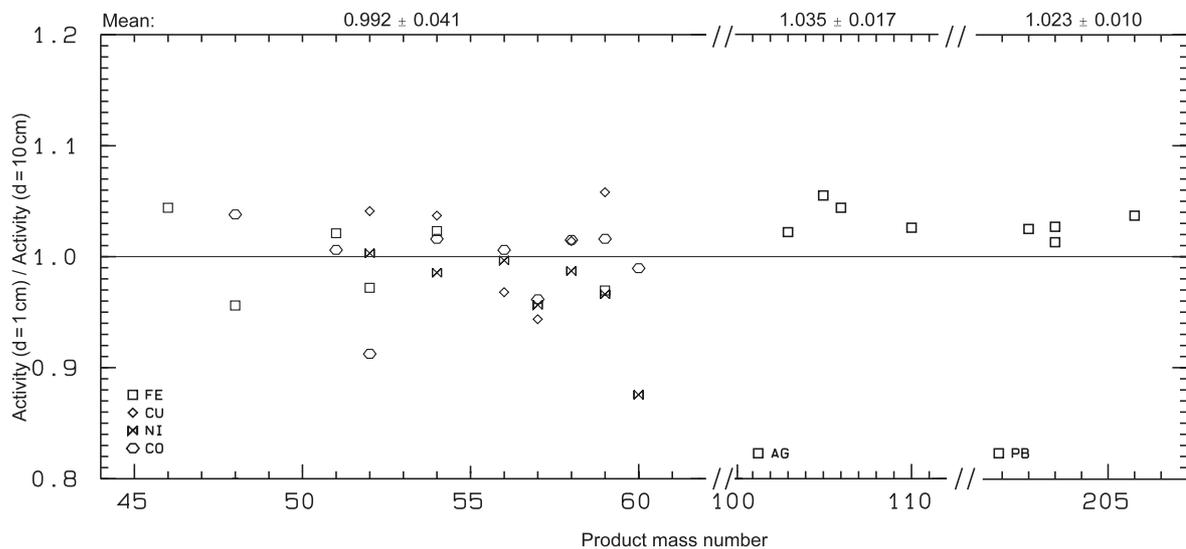


Abbildung 4.16 Verhältnisse der Aktivitäten, die in Eisen-, Kobalt-, Nickel-, Kupfer-, Silber- und Bleitargets bei 1 cm und 10 cm Abstand von der Detektorkappe gemessen wurden. Die Unsicherheiten sind der Übersichtlichkeit halber weggelassen.

Für die schwereren Targets ergeben sich für die Nahgeometrie systematisch leicht höhere Aktivitäten im Vergleich zur 10 cm-Geometrie. Eine Ursache dafür könnte sein, daß zum großen Teil nur eine Messung des Detektors BENNO zum Vergleich herangezogen werden konnte, wodurch - läge diese gegenüber den

anderen Messungen systematisch niedriger oder hätte BENNO ein leicht systematisch niedrigeres Ansprechvermögen - eine solche Verschiebung zustande kommen könnte. Eine systematisch niedrigere Efficiency wurde für die Messungen der leichteren Targets jedoch nicht einwandfrei festgestellt. Eine mögliche Ursache für diese Diskrepanz könnte sein, daß die Zerfallsschemata der schweren Produkte im Mittel komplexer sind als für die Nuklide geringer Massenzahlen und es durch die Vielzahl der zu berechnenden Kaskaden zu einer Überschätzung der Koinzidenzkorrektur kommt.

### 4.3.8 Auswertung der $\gamma$ -Spektren

Das am ZSR übliche Auswertungsverfahren der aufgenommenen Spektren von der Extraktion der Nettopeakflächen bis hin zur Bestimmung der Responseintegrale wird im folgenden beschrieben. Da dies ebenfalls schon Gegenstand vieler Arbeiten war und vollständig in [GL98A] dokumentiert ist, erfolgt die Beschreibung hier in knapper Form, um die zum Verständnis nötigen Grundlagen zu legen.

Zur Berechnung eines Wirkungsquerschnittes werden nach Gleichung (3.6) die Nettopeakflächen der  $\gamma$ -Linien eines Nuklides im Spektrum benötigt. Die Ermittlung derselben erfolgte ausschließlich mit dem Programm GAMMA-W [WE95]. Mit diesem Programm wurden die Spektren interaktiv einer Analyse unterzogen. Dazu teilt das Programm die Spektren in Regionen ein, deren Impulszahlverteilungen es nach Abzug des kontinuierlichen Untergrundes einem Least-Squares-Adjustment unterzieht. Die Kanalhalte werden dazu mit gaußförmigen Peaks unter Berücksichtigung eines möglichen niederenergetischen Tailing gefittet, wozu detektorspezifisch Tailingparameter und Polynome zweiten Grades zur Beschreibung des FWHM-Verlaufes in einer externen Bibliothek zur Verfügung gestellt wurden. Weitere Einzelheiten zur Funktionsweise von GAMMA-W [WE95] und zur Beurteilung dieses Programmes zur Auswertung komplexer Spektren [GL98A] können der Literatur entnommen werden.

In dieser Arbeit wurden Spektren angefangen von den einfachsten mit nur einem Peak - zum Beispiel  $^{11}\text{C}$  aus Graphit - bis hin zu komplexen Spektren mit bis zu 300 Peaks von Silber und Blei kurz nach der Bestrahlung bearbeitet. Auf die Aufwendigkeit und besonderen Schwierigkeiten bei der Auswertung komplexer Spektren wurde bereits in [GL98A] ausführlich eingegangen. Für die auf die Peakanalyse folgende Nuklididentifizierung wurde daher auf IDENT-MG [GL98A] zurückgegriffen - mit Ausnahmen für die einfacheren Spektren, für die teilweise das ältere IDENT [BO93] angewendet wurde.

Die in die hierfür benötigten Nuklidbibliotheken eingehenden Kerndaten, die Entkommwahrscheinlichkeiten und Halbwertszeiten, wurden dem Reus-Westmeier-Katalog [RE83] entnommen. Für die einzelnen Linien der identifizierten Nuklide werden die Aktivitäten am Ende der Bestrahlung berechnet und für jede Messung in die \*.ACT-Datei geschrieben. Diese dienen dem Programm KOINZ als Eingabe, das - soweit möglich - für jede Linie die Koinzidenzkorrektur vornimmt und die korrigierten Aktivitäten im ACT-Format in Dateien der Endung \*.KOI zurückschreibt.

Die Nuklididentifizierung wird für die Neutronenproben durch die echten Koinzidenzen erschwert, da dadurch sogenannte Summenlinien im Spektrum auftreten. Das sind Linien, die durch die gleichzeitige vollständige Energieabgabe zweier  $\gamma$ -Quanten eines Zerfallsschemas auftreten, zum Beispiel  $\gamma_2$  und  $\gamma_8$  nach Abbildung 4.11, wobei das  $\gamma$ -Quant der resultierenden Energie,  $\gamma_2+\gamma_8$ , jedoch nicht im Zerfallsschema vertreten ist. Für die Spektren der Targetelemente bis zum Kupfer lassen sich diese dank der begrenzten Anzahl von Linien und der sie produzierenden Nuklide leicht identifizieren. Schwieriger ist dies jedoch für die Elemente Silber und Blei, da die Zerfallsschemata der in ihnen produzierten Restkerne im Mittel komplexer sind als für die leichteren Targets und so *per se* mehr Summenlinien auftreten können. Bei Silber bleiben beispielsweise bei einer Messung kurz nach der Bestrahlung bis zu 30 % der Peaks unidentifiziert und werden Summenpeaks zugeordnet.

Mit Hilfe des Programmes NUKLID werden die Aktivitäten aus den \*.ACT-Dateien für jedes Nuklid geordnet nach Messungen und Linien blockweise zusammengefaßt, so daß in diesen \*.NUK-Dateien eine Auswahl der zur Berechnung der Responseintegrale, Wirkungsquerschnitte oder spezifischen Aktivitäten heranzuziehenden Werte erfolgt. Dieser sehr wichtige Vorgang findet manuell statt und erfordert die Bewertung der Resultate der einzelnen Messungen durch den Experimentator, der dabei

Halbwertszeitkontrollen, den Zerfall von Progenitoren sowie Linieninterferenzen berücksichtigen muß. Korrekturen von Linieninterferenzen erfolgen nach Gleichung (3.14) mit dem Programm INTEFKOR. Zur Berechnung von unabhängigen Wirkungsquerschnitten für den Fall eines Progenitors mit vergleichbarer Halbwertszeit werden die Aktivitäten mit dem Programm NEUFAM nach Gleichung (3.12) zunächst korrigiert. Muß der Zerfall des kurzlebigen Progenitors nach Gleichung (3.13) berücksichtigt werden, so erfolgt die Berechnung des Wirkungsquerschnittes mit dem Programm SIGFAM. Anderenfalls benutzt das Programm SIGMA die markierten Werte zur Berechnung der gewünschten Größe.

Für die Berechnung berücksichtigt SIGMA auch die Schwankung der Projekttilflußdichte und etwaige Unterbrechungen während der Bestrahlung. Dazu wird in der experimentspezifischen Datei (\*.ESD) der Zeitraum der Bestrahlung in Form von Strahlzeitintervallen  $[t_{\text{BoI},i}; t_{\text{EOI},i}]$  mit den zugehörigen relativen Strahlflußdichten  $\varphi_{r,i}$  (Kapitel 4.2.2.3) vollständig dokumentiert. Die Berechnung der Aktivierung erfolgt dann mit der modifizierten Aktivierungsgleichung

$$N_B(t_{\text{EOI}}) = \frac{\sigma N_T}{\lambda_B} \sum_i \overline{\varphi_{r,i}} e^{-\lambda_B(t_{\text{EOI}} - t_{\text{BoI},i})} (1 - e^{-\lambda_B(t_{\text{EOI},i} - t_{\text{BoI},i})}) \text{ mit } \overline{\varphi_{r,i}} = \frac{\varphi_{r,i} \sum_i (t_{\text{EOI},i} - t_{\text{BoI},i})}{\sum_i \varphi_{r,i} (t_{\text{EOI},i} - t_{\text{BoI},i})}. \quad (4.11)$$

### 4.3.9 Besonderheiten zur Messung und Auswertung von $^{44}\text{Ti}$

Die hier ausgewerteten Targetelemente Titan, Eisen und Nickel der Protonenbestrahlungen sind die Haupttargetelemente zur Produktion kosmogenen  $^{44}\text{Ti}$  in extraterrestrischer Materie. Da die Anregungsfunktionen zur Produktion von  $^{44}\text{Ti}$  zum Teil noch lückenhaft sind und Diskrepanzen zwischen unterschiedlichen Datensätzen existieren, wurde besonderer Wert darauf gelegt, eine komplette und konsistente Datenbasis dafür zu erstellen. Für Titan und Nickel wurden dazu Wirkungsquerschnitte über den gesamten Energiebereich bis 2.6 GeV gemessen. Für Eisen wurden infolge der neueren  $^{44}\text{Ti}$ -Messungen unserer Arbeitsgruppe von Gloris [GL98A] nur ausgewählte Targets herangezogen.

$^{44}\text{Ti}$  ist durch die beim Zerfall des Tochternuklides  $^{44}\text{Sc}$  emittierten niederenergetischen  $\gamma$ -Linien bei 67.8 und 78.4 keV sowie durch die Linie bei 1157 keV, die wiederum beim Zerfall des  $^{44}\text{Ca}$ , dem Tochternuklid von  $^{44}\text{Sc}$ , entsteht, nachzuweisen. Tabelle 4.12 gibt die in dieser Arbeit benutzten Kerndaten an [AL90, KI96].

Wie aus dieser Tabelle ersichtlich wird, haben sich zum einen die Entkommwahrscheinlichkeiten  $I_\gamma$  für die beiden niederenergetischen Linien gegenüber älteren Quellen nicht unerheblich geändert.

Zum anderen zeigen Halbwertszeitmessungen jüngerer Datums [AH98], daß die Halbwertszeit von dem älteren Wert

von 47.3 a [PF95, SE81] auf nunmehr 59.2 a [AH98, GÖ98] zu rücken scheint. Dieser Arbeit wurde die Messung von Alburger und Harbottle [AL90] zugrunde gelegt, da Literaturdaten zur Anwendung der Ergebnisse dieser Arbeit ebenfalls mit diesem Wert berechnet sind. Die Festlegung eines allgemein akzeptierten Wertes für die Halbwertszeit von  $^{44}\text{Ti}$  bleibt abzuwarten.

In früheren Arbeiten [DA94, SC95] erfolgte die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten für  $^{44}\text{Ti}$  anhand der beiden niederenergetischen Linien. Dazu wurden Spektren mit speziellen Verstärkereinstellungen auf nur einem Detektor mit  $d = 2$  cm [DA94] gemessen. Diese Nachweismethode hat den Nachteil, daß eine gleichzeitige Detektion der 1157 keV-Linie sowie anderer Nuklide nicht möglich ist und so einen Konsistenzcheck mit den Ergebnissen dieser verhindert wird. Zusätzlich ist die Möglichkeit, systemati-

Tabelle 4.12 Kerndaten von  $^{44}\text{Ti}$ . Angegeben sind die Daten, die in älteren Arbeiten [DA94] benutzt wurden [RE83, SE81] und die in dieser Arbeit zu Anwendung kommen [KI96, AL90].

$T_{1/2}$ [a]	$I_\gamma$ 67.8 keV	$I_\gamma$ 78.4 keV	$I_\gamma$ 1157 keV	Quelle
47.3 [SE81]	0.880	0.945	0.999	[RE83]
66.6 [AL90]	0.944	0.962	0.999	[KI96]

sche Fehler durch Vergleich von Ansprechvermögen unterschiedlicher Detektoren zu vermeiden, nicht gegeben und eine aufwendige, mit Unsicherheiten behaftete Behandlung echter Koinzidenzen ist nötig. Um diese Schwierigkeiten zu umgehen, wurden für diese Arbeit zum Nachweis von  $^{44}\text{Ti}$  fünf verschiedene, mit Bleiburgen abgeschirmte HPGe- und Ge(Li)-Detektoren genutzt, von denen einer mit einem Berylliumfenster (GE\_\_01), die restlichen mit Aluminiumkappen ausgestattet waren. Die Messungen wurden auf einer Meßgeometrie mit  $d = 5$  cm vorgenommen, für die echte Koinzidenzen zu vernachlässigen sind. Lediglich einige Proben, für die infolge deren geringer  $^{44}\text{Ti}$ -Aktivitäten in dieser Geometrie keine gute Statistik erreicht wurde, wurden auch mit  $d = 1$  cm gemessen. Für diese Nahgeometrie wurde die Efficiency mit dem Standard TIUH282 (siehe unten) bestimmt.

In Anschluß an die Meßmethode von Daunke [DA94] wurden die niederenergetischen Linien in *einer* Messerie mit einer speziellen Verstärkereinstellung detektiert, so daß nur Energien bis  $\sim 1000$  keV detektiert wurden. Bei allen anderen Messungen wurde zusätzlich die hochenergetische 1157 keV-Linie ausgewertet. Die Spektrenauswertung erfolgte mit GAMMA-W [WE95], das im Bereich 70 bis 80 keV die durch die Bleiröntgenlinien mitverursachten Dubletts imstande ist zu entfalten.

Da in vorangegangenen Arbeiten [DA94, SC95, DE96] Schwierigkeiten mit der Auswertung des  $^{44}\text{Ti}$  auftraten, wurde besonderer Wert auf eine Überprüfung der Qualität der Daten gelegt. Entscheidend dazu ist, die Konsistenz der Ansprechvermögen der einzelnen Detektoren sicherzustellen, wofür zwei besonders aktive Proben TIPR022 des Experimentes PSIY und TIUH282 aus UPPS0H als Standards auf allen Detektoren gemessen wurden. Innerhalb von 7 % stimmten die Aktivitäten aller drei Linien auf den Detektoren gut überein. Da die Probe TIPR022 als interner Standard an der Abteilung Nuklearchemie, Köln, verwendet wird, kann das Target TIUH282 ( $A(t_{\text{EOI}}) = 2.04 \pm 0.15$  Bq (mit den Eingangsdaten [HU95, AL90, KI96]) in Zukunft als ZSR-interner Standard benutzt werden.

Tabelle 4.13 Aktivitäten  $A(t_{\text{EOI}})$  des Standards TIPR022 gemessen in dieser Arbeit sowie in der von Daunke [DA94]. Daunke gibt die Aktivitäten getrennt für die Linien 68 keV und 78 keV an. Mean stellt den Mittelwert daraus dar. Kursive Werte sind die auf die  $I_\gamma$  dieser Arbeit umnormierten. Kern- und Absorptionsdaten dieser Arbeit sind - neben den aus [KI96] - jeweils angegeben<sup>1</sup>.

diese Arbeit	$A(t_{\text{EOI}})$ [Bq]			
	Daunke [DA94]			
	Messungen auf Ge__01Hannover Kerndaten aus [RE83] [KI96]		Messungen auf GEINO Köln [RE83] [KI96]	
$6.58 \pm 0.42$ [ST70, SE81]	Mean <sup>2</sup> : $6.69 \pm 0.22$	<i><math>6.40 \pm 0.05</math></i>	Mean <sup>2</sup> : $6.66 \pm 0.09$	<i><math>6.37 \pm 0.18</math></i>
	68 keV: $6.84 \pm 0.06$	<i><math>6.36 \pm 0.06</math></i>	68 keV: $6.72 \pm 0.17$	<i><math>6.24 \pm 0.16</math></i>
$6.41 \pm 0.41$ [HU95, AL90]	78 keV: $6.53 \pm 0.06$	<i><math>6.43 \pm 0.06</math></i>	78 keV: $6.59 \pm 0.19$	<i><math>6.49 \pm 0.18</math></i>

<sup>1</sup> Die Umstellung der Absorptionsdaten von dem älteren, von Daunke benutzten Satz Storm und Israels [ST70] auf den neueren von Hubbel und Seltzer [HU95] erhöht die Aktivitäten um etwa 0.3 %.

<sup>2</sup> Die Unsicherheit ist die Standardabweichung des Mittelwertes.

Das Ergebnis für TIPR022 ist in Tabelle 4.13 angegeben und wird mit den Daten von Daunke [DA94] verglichen. Da dieser aber die älteren  $I_\gamma$  [RE83] benutzt hat, wurden seine Werte auf die  $I_\gamma$  dieser Arbeit umnormiert. Die bessere Qualität der neueren Kerndaten dieser Arbeit könnte sich jedoch nur im Falle der Messungen auf dem Detektor GE\_\_01 durch die Reduktion der Differenzen zwischen beiden Linien manifestieren. Vergleicht man die Ergebnisse so ergibt sich eine gute Übereinstimmung für die Aktivitäten dieser Arbeit und den umnormierten Daunkes auf beiden Detektoren, wodurch die Konsistenz der Meßmethoden beider Arbeiten sichergestellt sein sollte.

## 4.4 Röntgenspektroskopie zur Messung von $^{55}\text{Fe}$

Wie im Fall des  $^{44}\text{Ti}$  ist die Protonen-induzierte Produktion von  $^{55}\text{Fe}$  ( $T_{1/2} = 2.73$  a) zur Interpretation kosmogener Produktionsraten dieses Nuklides in extraterrestrischer Materie interessant. Aus den im folgenden dargelegten Gründen ist der Nachweis von  $^{55}\text{Fe}$  mit einigem experimentellen Aufwand verbunden, so daß für dieses Nuklid Wirkungsquerschnitte aus den Haupttargetelementen in extraterrestrischer Materie, Eisen und Nickel, nur sehr unvollständig vorliegen. Dieser unbefriedigenden Situation wurde in dieser Arbeit versucht, Abhilfe zu schaffen.

$^{55}\text{Fe}$  läßt sich nur über die vom Tochternuklid  $^{55}\text{Mn}$  ausgesendeten Röntgenstrahlen (X-Strahlen) nachweisen, da infolge des Elektroneneinfanges keine  $\gamma$ -Quanten entstehen. Tabelle 4.14 gibt die Kerndaten der  $K_{\alpha}$ - und  $K_{\beta}$ -Linien von  $^{55}\text{Mn}$  an sowie die im folgenden ebenfalls gebrauchten X-Linien von  $^{57}\text{Fe}$  und  $^{54}\text{Cr}$ , die beim Zerfall von  $^{57}\text{Co}$  beziehungsweise  $^{54}\text{Mn}$  entstehen.

Danach bilden die  $K_{\alpha}$ - und  $K_{\beta}$ -Linie zum einen jeweils ein um  $\sim 0.6$  keV auseinanderliegendes Dublett und zum anderen fällt die  $K_{\beta}$ -Linie nahezu mit der  $K_{\alpha}$ -Linie des eine Ordnungszahl höherliegenden Nuklides zusammen. Der übliche Weg, das  $^{55}\text{Fe}$  zu messen, ist daher zunächst die Bildung einer  $^{55}\text{Fe}$ -Fraktion des Bestrahlungstargets durch chemische Abtrennung. Dadurch wird bei der anschließenden Detektion eine Interferenz durch die ebenfalls im Target vorhandenen Nuklide  $^{57}\text{Co}$  und  $^{54}\text{Mn}$  vermieden. Die röntgenspektrometrische Messung erfolgt auf extra für X-Strahlen ausgelegte Halbleiterdetektoren; das sind mit  $\text{LN}_2$ -gekühlte Si(Li)-Detektoren, die idealerweise bei 5.9 keV eine Auflösung im Bereich von  $\approx 0.2$  keV aufweisen, wodurch die Trennung des Dubletts von  $^{55}\text{Fe}$  im Spektrum sichergestellt wird.

In dieser Arbeit konnte weder eine chemische Aufarbeitung durchgeführt werden, noch standen Si(Li)-Detektoren am ZSR zur Messung von X-Strahlen zur Verfügung. Um dennoch Wirkungsquerschnitte zu bestimmen, wurden die Targets als Ganze in einem Abstand von  $d \approx 2$  cm auf zwei HPGe-Detektoren (GE\_01 und BENNO) mit Berylliumfenster gemessen. Durch die geringe Absorption in den Fenstern bieten solche HPGe-Detektoren auch die Möglichkeit zur Detektion von X-Strahlen - wenn auch mit einer im Vergleich zu Si(Li)-Detektoren sehr viel schlechteren Auflösung von 0.6 keV (BENNO) beziehungsweise 0.8 keV (GE\_01).

Abbildung 4.17 zeigt dazu die auf dem Detektor GE\_01 gemessenen Spektren der drei Standardpräparate  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{57}\text{Co}$  und  $^{54}\text{Mn}$ . Zum einen ist das  $K_{\alpha}$ - $K_{\beta}$ -Dublett eines Nuklides selbst nicht aufgelöst und bildet *einen* asymmetrischen Peak. Zum anderen werden die Peaks aller drei Nuklide - werden sie gemeinsam in einem Spektrum gemessen - wiederum nur einen Peak im Spektrum ergeben. Diese Fakten haben zweierlei Auswirkungen auf die Auswertung dieser Spektren.

Die unaufgelösten Dubletts wurden mit dem Programm GAMMA-W entfaltet, was größtenteils erfolgreich möglich war, da die Beiträge der Nuklide  $^{57}\text{Co}$  und  $^{54}\text{Mn}$  zur Peakfläche überwiegend gering waren (siehe unten). Entsprechend der Streuung der Aktivitäten der zwei Linien des  $^{55}\text{Fe}$  wurde die Unsi-

Tabelle 4.14 Kerndaten für die  $K_{\alpha}$ - und  $K_{\beta}$ -Linien [SC93], die beim Zerfall des angegebenen Nuklides auftreten. Zur Abgrenzung von den  $\gamma$ -Quanten werden die Entkommwahrscheinlichkeiten mit  $I_x$  bezeichnet.

Nuklid	E ( $K_{\alpha}$ ) [KeV]	$I_x$	E ( $K_{\beta}$ ) [KeV]	$I_x$
$^{57}\text{Co}$	6.40	0.51	7.06	0.069
$^{55}\text{Fe}$	5.90	0.2452	6.49	0.0329
$^{54}\text{Mn}$	5.41	0.226	5.95	0.03

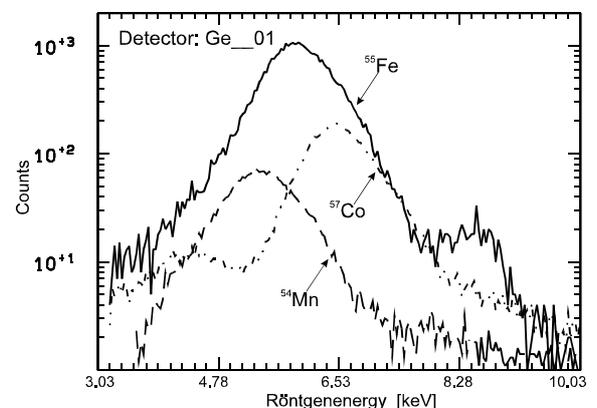


Abbildung 4.17 Auf dem Detektor GE\_01 gemessene Spektren der Standardpräparate  $^{55}\text{Fe}$ ,  $^{57}\text{Co}$  und  $^{54}\text{Mn}$ . Die Zählraten der einzelnen Spektren sind nicht auf gleiche Meßzeiten normiert.

cherheit der Efficiency mit 10 % abgeschätzt. Die radiale Abhängigkeit des Ansprechvermögens wurde konstant gesetzt, da das exemplarisch am Detektor BENNO gemessene Radialprofil keinen Hinweis auf eine signifikante Abweichung von der Konstanz ergab. Eine solche war auch nicht zu erwarten gewesen, da die niederenergetischen Quanten bereits innerhalb des ersten Millimeter Germanium ihre Energie vollständig abgeben.

Der zweite Punkt der interferierenden Beiträge im Peak des Spektrums der Bestrahlungsprobe aus  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{57}\text{Co}$  wurde folgendermaßen behandelt. Um die Größe der Korrekturen der Interferenzen und damit die Unsicherheiten der  $^{55}\text{Fe}$ -Wirkungsquerschnitte möglichst klein zu halten, wurden die Bestrahlungspen sowie möglich aus alten Experimenten ausgewählt. Bis auf zwei Proben stammen alle untersuchten Targets aus den Experimenten FIRST5 [GL93], FIRST7 [GL93], UPPS03 [BO93] und PSIX [LY93], deren Bestrahlungsende spätestens Ende 1991 war. Damit lagen zwischen Bestrahlung und Messung mindestens fünf Jahre oder  $\sim 6.7 \cdot T_{1/2}$  ( $^{57}\text{Co}$ ) und  $\sim 5.8 \cdot T_{1/2}$  ( $^{54}\text{Mn}$ ), so daß die Aktivitäten dieser Nuklide entsprechend abgeklungen waren.

Der Anteil des 5.95 keV-Quants von  $^{54}\text{Mn}$  beziehungsweise des 6.4 keV-Quants des  $^{57}\text{Co}$  an den zugehörigen gemessenen  $^{55}\text{Fe}$ -Nettopeakflächen wurde durch Einsetzen der Wirkungsquerschnitte der Protonen-induzierten Produktion beider Nuklide in die auf NP umgestellte Gleichung (3.6) unter zusätzlicher Berücksichtigung der Selbstabsorption mit dem Faktor  $r_{\text{abs}}$  berechnet und von der  $^{55}\text{Fe}$ -Nettopeakfläche abgezogen. Die benutzten Anregungsfunktionen dafür sind in Abbildung 4.18 dargestellt. Die Korrekturen waren für die jüngsten Proben am größten und betragen für diese maximal 5 %, wobei der Anteil von  $^{54}\text{Mn}$  infolge der etwa um zwei Größenordnungen höheren Produktion für Energien größer als 30 MeV (Abbildung 4.18) daran maßgeblich war.

Entsprechend der niedrigen Energien der X-Strahlen ist eine akkurate Behandlung der Selbstabsorption unabdingbar. Im Gegensatz zur  $\gamma$ -Spektrometrie muß zunächst einmal auch die Absorption der X-Quanten

in der Polyesterfolie des Standardpräparats selbst berechnet werden. Dazu standen Absorptionsdaten des Beiblatts zu den PTB-Standardpräparaten zur Verfügung. Zum Beispiel beträgt  $r_{\text{abs}}$  für das 5.9 keV-Quant des  $^{55}\text{Fe}$  0.963 (2.2 mg/cm<sup>2</sup> Polyesterfolie). Die Absorption in der radioaktiven Substanz des Standards wurde vernachlässigt, da auch seitens der PTB darüber keine genaue Angabe gemacht wurde (Faktor 1.005 bis 1.02). Zur Unsicherheit des Wirkungsquerschnittes trägt die Unsicherheit der Aktivität des Standards mit 2 % und die der Absorption im Standard ebenfalls mit 2 % bei.

Die Absorption in den Bestrahlungspen selbst ist dagegen erheblich. Für eine typische Eisenprobe der Massenbelegung 0.118 g/cm<sup>2</sup> berechnet man nach [HU95] einen Korrekturfaktor  $r_{\text{abs}}$  (5.9 keV) von 0.098, das heißt, 90 % der X-Quanten werden in der Probe absorbiert.

Da die Messung und Auswertung von  $^{55}\text{Fe}$  nach dem oben beschriebenen Verfahren eine ganzen Reihe nicht unerheblicher Korrekturen erfordert und so auch mit entsprechenden Unsicherheiten behaftet ist, wurde versucht, weitere Möglichkeiten zur Messung dieses Nuklides zu erschließen. So wurde auf meine Initiative hin am ZSR ein vorhandener, jedoch noch nicht betriebsbereiter Peltier-gekühlter Si-Detektor (Einsatz im Vakuum bei etwa -30 °C, aktive Fläche 5000 mm<sup>2</sup>, Dicke 5 mm) am Standort Herrenhausen aufgebaut und in Betrieb genommen. Testmessungen zur Detektion von  $^{55}\text{Fe}$  an diesem Detektor wurden von mir durchgeführt, waren jedoch nicht erfolgreich. Infolge des großen aktiven Volumens des ursprünglich mit dem Ziel der  $\beta$ -Spektrometrie angeschafften Detektors und der im Vergleich zur Kühlung mit LN<sub>2</sub> (-196 °C) hohen Betriebstemperatur ergibt sich für dieses System ein Grundrauschen von etwa 80 keV [KN97], unterhalb dessen keine Quanten registriert werden können.

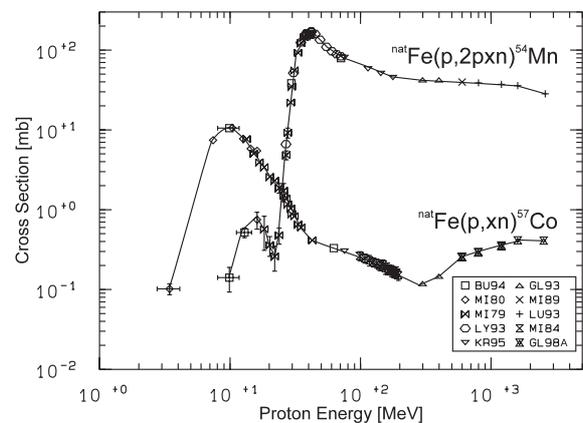


Abbildung 4.18 Anregungsfunktionen zur Produktion von  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{57}\text{Co}$ , die zur Korrektur der gemessenen  $^{55}\text{Fe}$ -Nettopeakflächen benutzt wurden. Die eingezeichneten Linien sind eye-guides. Weiteres siehe Text.

Im Vergleich dazu hat ein LN<sub>2</sub>-gekühlter Germaniumdetektor ein Grundrauschen von etwa 700 eV, was zu einer, auch in dieser Arbeit gemessenen Auflösung im keV-Bereich von etwa 1 keV führt. Bei etwa -30 °C betriebene Si-Detektoren, die eine zur Trennung des <sup>55</sup>Fe-Dubletts hinreichende Auflösung von 250 eV (5.9 KeV) haben, werden kommerziell angeboten, weisen dann jedoch aktive Flächen von 7 mm<sup>2</sup> und Dicken von 300 µm auf. Da die Bestrahlungsproben aber Flächen von etwa 180 mm<sup>2</sup> haben, wäre eine Messung auf solchen Detektoren nur nach Herstellung entsprechend geometrisch kleiner <sup>55</sup>Fe-Fraktionen durch chemische Abtrennung sinnvoll.

Ein weiterer Versuch zur Messung des <sup>55</sup>Fe wurde an der Abteilung Nuklearchemie, Universität zu Köln, gestartet. An diesem Institut steht ein LN<sub>2</sub>-gekühlter Si(Li)-Detektor mit einer aktiven Fläche von 80 mm<sup>2</sup> zur Verfügung. Das Problem hierbei besteht in der Tatsache, daß die aktivierte Fläche eines Targets - abhängig von den Strahlparametern der Bestrahlungseinrichtung - nicht bekannt ist und etwa die Hälfte bis die gesamte Probe umfaßt. Insbesondere für komplett gleichmäßig aktivierte Proben ergibt sich eine Fläche, die größer als die aktive Fläche des Detektors ist. Zur Messung der Efficiency standen jedoch nur Punktpräparate zur Verfügung; eine Korrektur des Geometrieeffektes beim Übergang von der Punktquelle zu den Aktivierungsproben kann für jedes Experiment individuell durch Vergleich der <sup>57</sup>Co und <sup>54</sup>Mn Wirkungsquerschnitte aus den Si(Li)-Messungen mit den entsprechenden mit  $\gamma$ -Spektrometrie gewonnenen Daten erfolgen.

Die Auswertung der auf diesem Detektor gemessenen Spektren wurde vorgenommen, ergab jedoch kein konsistentes Bild für alle Proben. Erschwerend kam hinzu, daß es während der Meßreihe durch eine ungeklärte Ursache beim Stickstofffüllen zu einer immensen Peakverbreiterung kam, so daß einige Wochen lang keine Messungen möglich waren. Erst nach Wiederherstellung der ursprünglichen Auflösung wurde jedoch der Großteil der Efficiency aufgenommen. Vergleichsmessungen von Proben vorher und nachher ergaben Veränderungen in den Zählraten, die jedoch für verschiedene Proben nicht die gleiche Tendenz hatten.

Durch das Vorhandensein von zwei unbekanntem, dem Geometriefaktor und einer möglichen Efficiency-änderung, wurde die Auswertung erheblich unsicher. Insgesamt traten derart viele Ungereimtheiten auf, daß die Auswertung dieser Messungen schließlich aufgegeben wurde. Eine vollständige Darstellung der Sachlage hier erscheint infolge der Komplexität und der auch nur für *diese* Messungen spezifischen Situation nicht sinnvoll. Der Start einer komplett neuen Meßreihe für die Dauer von mehreren Monaten und deren Auswertung war im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr möglich.

Insgesamt waren so nur die Messungen auf den HPGe-Detektoren am ZSR erfolgreich und haben zu sinnvollen Ergebnissen geführt (Kapitel 5.1.3). Allerdings wurden nur Wirkungsquerschnitte aus Eisen bestimmt. Die Messung weiterer Targetelemente und der insbesondere zur Durchführung von Modellrechnungen zur Produktion kosmogener <sup>55</sup>Fe wichtiger Targets aus den Dicktargetexperimenten erfolgte nicht, da Testmessungen dieser Targets auf dem Detektor Ge\_\_01 keine brauchbaren Response innerhalb kurzer Meßzeiten von maximal etwa einem Tag ergaben, wie sie für die Wirkungsquerschnittsmessungen benötigt wurden. Tatsächlich erforderliche Meßzeiten hätten im Bereich von drei bis vier Tagen gelegen. Für derartig lange Meßzeiten standen die Detektoren jedoch nicht zur Verfügung, da sie auch für andere Projekte genutzt wurden und für diese unabdingbar waren.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde in unserer Arbeitsgruppe zum ersten Mal Röntgenspektroskopie durchgeführt und die experimentell zur Verfügung stehenden Möglichkeiten ausgetestet. Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die Detektion und Auswertung von Messungen chemisch unbehandelter Bestrahlungsproben auf <sup>55</sup>Fe hin mit HPGe-Detektoren möglich ist - allerdings ist dieses Verfahren mit Unsicherheiten verbunden. Ein Vergleich mit Ergebnissen aus Messungen mit chemisch abgetrennten <sup>55</sup>Fe-Fraktionen auf zur Röntgenspektrometrie geeigneten Detektoren sollte daher erfolgen.

Da durch die in den vergangenen Jahren durchgeführten Bestrahlungsexperimente ein in Bezug auf Bestrahlungsenergien und Elementen einmalig großer Satz an aktivierten Proben zur Verfügung steht, sollte in Zukunft auch die Chance zur Messung mit Röntgenspektroskopie genutzt werden. Neben dem für die Kosmophysik relevanten <sup>55</sup>Fe ist die Detektion von <sup>49</sup>V (T<sub>1/2</sub> = 330 d) interessant. Zum einen kann es für Studien zu Fragmentationsreaktionen aus den schweren Targetelementen zur Erweiterung der bisher begrenzten Anzahl detektierter Restkerne in diesem Massenzahlbereich angewendet werden. Zum anderen ist <sup>49</sup>V für Untersuchungen zur Propagation kosmischer Strahlung von Bedeutung [RA79].

## 4.5 Analyse der Unsicherheiten

Jede wissenschaftliche Messung einer physikalischen Größe beinhaltet Unsicherheiten. Im folgenden werden daher die Quellen für die Unsicherheiten der in dieser Arbeit durchgeführten Experimente angeführt und ein Schätzwert für die jeweiligen Unsicherheiten wird angegeben. Die zu untersuchenden physikalischen Größen sind der Wirkungsquerschnitt und die Protonenenergie.

### 4.5.1 Unsicherheit der Energie

Zu der Unsicherheit der Protonenenergie tragen drei Quellen bei:

- ◆ Die Unsicherheit der Primärenergie  $\Delta E_p$ , die von den Operateuren als Unsicherheit der Messung der Primärenergie angegeben wird.
- ◆ Die Unsicherheit  $\Delta E_s$ , die durch das energy straggling (Gleichung (3.17)) beim Durchgang durch die Folien des Stacks verursacht wird.
- ◆ Die Unsicherheit  $\Delta E_M = E_a - E_e$ , die sich durch Berechnung der Energie in einer Folie als Mittelwert aus Eintritts-  $E_e$  und Austrittsenergie  $E_a$  ergibt.

Gemäß der Fortpflanzung der Unsicherheiten ergibt sich die Gesamtunsicherheit in der i-ten Folie eines Stacks zu

$$\Delta E_i = \sqrt{(\Delta E_p)^2 + \left(\frac{E_{a,i} - E_{e,i}}{2}\right)^2 + \left(\sum_{k=1}^i \alpha_k\right)^2}. \quad (4.12)$$

Die Unsicherheit der Energie durch die in die Bremsrechnungen eingehenden Koeffizienten nach Andersen und Ziegler [AN77] wird vernachlässigt, da Rechnungen mit verschiedenen Ansätzen [WI66, JA82, FI96, ZI85] jeweils Übereinstimmungen innerhalb der Unsicherheiten ergaben [GL93, PR97A]. Für die in dieser Arbeit untersuchten Folien belief sich die Unsicherheit nach Gleichung (4.12) auf maximal 1.6 MeV und blieb für alle Targets unterhalb von 2 %.

### 4.5.2 Unsicherheit des Wirkungsquerschnittes

Die Ursachen für die Unsicherheit des letztendlich bestimmten Wirkungsquerschnittes setzen sich aus denen der Experimentiertechnik, denen durch die Messung und denen bei der Auswertung der Spektren zusammen.

#### 4.5.2.1 Unsicherheiten durch die Experimentiertechnik

Zur Durchführung der Experimente wurde die stacked-foil-technique angewendet. Durch die von ihr benutzte Methode, die zu bestrahlenden Folien hintereinander zu stapeln, treten die folgenden Unsicherheiten auf.

- ◆ Crosskontaminationen der untersuchten Folien mit Nukliden aus den umgebenden Targets  
Bei den Protonenbestrahlungen wurde diese Fehlerquelle vermieden, indem jeweils drei Folien desselben Elementes hintereinander plaziert wurden und nur die mittlere ausgewertet wurde.  
Bei den Neutronenbestrahlungen dagegen wurde dieses Prinzip hauptsächlich wegen des begrenzten Platzes in der Targetkammer nicht beibehalten. Da die Massenzahlen der Produkte für die Neutronenenergien bis 160 MeV maximal etwa um  $\Delta A \approx 20$  kleiner sind als die des Targets, würde eine Kontamination nur die Proben betreffen, die mit Folien etwa gleicher Massenzahl umgeben waren.

Dies sind die Eisen-, Kobalt-, Nickel- und die zwischen sie plazierten Kupfertargets. In Folien mit geringeren Massenzahlen - etwa Graphit - wurden jedoch keine Nuklide aus dem umgebenden Kupfer nachgewiesen, so daß auch für die Neutronenproben Unsicherheiten durch Crosskontaminationen nicht in Betracht gezogen werden. Darüber hinaus wirkt sich die große Masse der Neutronentargets günstig aus, wodurch mögliche Crosskontaminationen einen vernachlässigbaren Beitrag zur Gesamtproduktion eines Nuklides haben sollten.

◆ Rückstoßverluste von Produkten

Für die Protonenbestrahlungen wird diese Unsicherheitsquelle minimiert, da sich die Rückstoßverluste für die mittlere Folie durch die umgebenden Folien ausgleichen sollten.

Dieser Ausgleich kann für die Neutronentargets nicht vorausgesetzt werden. Da die minimale Dicke der Folien jedoch den gegenüber Rückstoßreichweiten beachtlichen Wert von 1 mm betrug, werden Verluste nicht berücksichtigt. Wiederum wirkt sich die große Targetkernanzahl günstig aus, wodurch die Unsicherheit durch eventuelle Verluste vernachlässigbar wird.

◆ Zusätzliche Produktion aus Verunreinigungen in den Folien

Da ausschließlich hochreine Folien verwendet wurden, wird eine Unsicherheit dadurch ausgeschlossen.

#### 4.5.2.2 Unsicherheiten bei den Messungen

◆ Unsicherheiten durch die Totzeit des Meßsystems

Durch die endliche Verarbeitungszeit der Messelektronik können die Meßapparaturen während der sogenannten Totzeit keine Daten aufnehmen. Daher wird außer der tatsächlich vergangenen Zeit  $t_{\text{real}}$  die für die Datenaufnahme zur Verfügung stehende Zeit  $t_{\text{live}}$  registriert und gespeichert. Die Korrektur der Nettopeakfläche erfolgte dann unter Annahme linearen Verhaltens mit  $t_{\text{live}}/t_{\text{real}}$ . Diese Korrektur ist bis etwa 10 % Totzeit zu verwenden, so daß darauf geachtet wurde, die Totzeit unterhalb dieses Wertes zu halten. Unsicherheiten aus dieser Quelle wurden daher nicht einkalkuliert. Die fehlerhafte Totzeitkorrektur auch unterhalb von 10 % Totzeit bei einem für die Protonenproben benutzten Detektor (GELI03) wurde nach der in [GL98A] beschriebenen Methode korrigiert.

◆ Unsicherheiten durch Pile-Up-Effekte

Bei hohen Zählraten ( $\geq 10^3 \text{ s}^{-1}$ ) kann für die Impulse ein Aufstockungseffekt auftreten, der sogenannte Pile-Up-Effekt [DE80]. Dieser Effekt trägt nicht zur Unsicherheit bei, da solche Messungen nur in Ausnahmefällen für die Protonenproben vorkamen und nicht zur Auswertung herangezogen wurden. Im Falle der Neutronenfolien ist dieser Effekt infolge der niedrigen Zählraten ausgeschlossen.

◆ Unsicherheiten durch die Positionierung der Proben vor der Detektorkappe

Die Unsicherheit der Positionierung der Targets wird vernachlässigt, da entsprechende Halterungen für eine genaue Position vor der Detektorkappe sorgen. Die Tatsache, daß die Aktivität der Standardpräparate aufgrund ihrer Konstruktion als Ringpräparate 1 mm oberhalb des Auflagepunktes des Targets zu liegen kommt, wurde mit einer Korrektur berücksichtigt, deren Unsicherheit in die des Ansprechvermögens eingeht.

#### 4.5.2.3 Unsicherheiten bei der Auswertung und Berechnung der Wirkungsquerschnitte

Die Berechnung der Wirkungsquerschnitte beziehungsweise der Responseintegrale erfolgt allgemein nach Gleichung (3.6) und (3.13) beziehungsweise (3.25), in der nun jede Eingangsgröße auf die zugehörige Unsicherheit untersucht werden muß, die im Rahmen der Fehlerfortpflanzung berücksichtigt wird. Als Unsicherheitsquellen von vornherein ausgeschlossen werden die Bestrahlungs- und Meßdauern  $t_{\text{irr}}$  und  $t_{\text{M}}$ , da für sie auf eine sorgfältige Bestimmung geachtet wurde.

Da eine Probe nach der Bestrahlung mehrmals gemessen wird, werden zur Berechnung der Aktivität

eines Nuklids am Ende der Bestrahlung in der Regel mehrere Aktivitäten  $A_i \pm \Delta A_i$  aus den Messungen herangezogen. Aus ihnen wird der fehlergewichtete Mittelwert  $A \pm \Delta A$  nach

$$A = \left( \sum_i \frac{A_i}{(\Delta A_i)^2} \right) \cdot \left( \sum_i \frac{1}{(\Delta A_i)^2} \right)^{-1} \text{ und } \Delta A = \sqrt{ \left( \sum_i \frac{(A_i - A)^2}{(\Delta A_i)^2} \right) \cdot \left( \sum_i \frac{1}{(\Delta A_i)^2} \right)^{-1} } \quad (4.13)$$

bestimmt. Daher werden zunächst die in die Aktivitäten  $\Delta A_i$  eingehenden Unsicherheiten betrachtet:

◆ Unsicherheit der Nettopeakfläche

Für jeden Peak wird bei der Auswertung mit GAMMA-W die Unsicherheit der Nettopeakfläche resultierend aus der des Peakfits und des Untergrundabzuges von GAMMA-W berechnet und bei den folgenden Auswertungen berücksichtigt.

Erfolgt eine Korrektur der Nettopeakfläche auf einen interferierenden Beitrag hin mit INTEFKOR, so wird die Unsicherheit der Aktivität des überlagernden Nuklides mit Fehlerfortpflanzung berücksichtigt. Den Erfahrungen der Thesis von Gloris [GL98A] folgend wird darüber hinaus für die Targetelemente Silber und Blei, für die komplexe Spektren gemessen werden, sowie für die das Produkt  $^{44}\text{Ti}$  für vernachlässigte Beiträge eines oder mehrerer Nuklide zu einer Nettopeakfläche eine Unsicherheit von 2 % veranschlagt.

Die Korrektur der Selbstabsorption wurde anhand des in Kapitel 4.3.6.2 vorgestellten Verfahrens vorgenommen. Für die Geometrie der Protonenproben wird die Annahme zur Berechnung - alle  $\gamma$ -Quanten treten senkrecht aus der Probe aus - als fehlerfrei angesehen, so daß nur die Unsicherheiten der Absorptionskoeffizienten [HU95] zu berücksichtigen sind. Hubbel und Seltzer [HU95] geben in ihrer Arbeit selber keine Unsicherheiten an. Im Bereich von  $> 100$  keV liegen die Abweichungen zwischen den Berechnungen mit XCOM und mit einem weiteren von NIST zur Verfügung gestellten Programm FFAST für  $Z > 10$  im Bereich von 0-2 %. Infolge dieser geringen Unterschiede wird für die Absorptionskoeffizienten keine Unsicherheit einberechnet und die Responseintegrale und Wirkungsquerschnitte werden als basierend auf den XCOM-Absorptionsdaten angegeben. Sollten genauere Eingangsdaten zur Absorptionsberechnung zur Verfügung stehen, so sollten diese kontrolliert und gegebenenfalls aktualisiert werden.

Neben den Unsicherheiten der Absorptionskoeffizienten selbst ist für die Neutronentargets eine Unsicherheit für die angewendete Berechnungsvorschrift nach Kapitel 4.3.6.2 anzusetzen. Diese wurde nach den Abweichungen der numerischen Integration von Gleichung (4.5) von der für die Berechnung der Aktivitäten angewendeten Methode nach Gleichung (4.6) und (4.10) mit 4 % abgeschätzt.

Die Korrektur der echten Koinzidenzen nach Kapitel 4.3.6.1 wird entsprechend der Streuung der einzelnen Linien nach Abbildung 4.12 und den Ergebnissen für die Korrekturen an den Standardpräparaten  $^{60}\text{Co}$  und  $^{22}\text{Na}$  mit 5 % abgeschätzt. Im Falle der Protonenproben wurden ebenfalls Summenpeaks als Resultate echter Koinzidenzen beobachtet. Dieser entsprechend des geringeren Ansprechvermögens zu erwartende kleine Effekt rechtfertigt eine aufwendige Korrektur wie im Falle der Neutronentargets nicht, so daß nicht berücksichtigte echte Koinzidenzeffekte mit 4 % abgeschätzt werden.

Zufällige Koinzidenzen von  $\gamma$ -Quanten, die von zwei verschiedenen Kernen emittiert werden, treten nur bei hohen Zählraten auf, wurden bei der Auswertung nicht beobachtet und werden daher als Unsicherheitsquelle nicht in Betracht gezogen.

◆ Unsicherheiten der Kerndaten

Unsicherheiten der Halbwertszeiten oder Entkommwahrscheinlichkeiten wurden nicht miteinbezogen, da diese Daten als hinreichend genau bekannt vorausgesetzt werden.

◆ Unsicherheit der Full-Energy-Peak Efficiency

Wie in Kapitel 4.3.5.1 beschrieben ist die Bestimmung des Ansprechvermögens im Falle der Geometrie der Protonenproben unproblematisch, so daß hier infolge der Reproduzierbarkeit der

Aktivitäten der Standardpräparate mit dem gemessenen Efficiencyverlauf eine Unsicherheit von 3 % und im Falle des  $^{44}\text{Ti}$  von 5 % angesetzt wird.

Im Falle der Nahgeometrie der Neutronenproben wird nach Kapitel 4.3.5.2 zunächst die Messung der Efficiency der entfernten Geometrie ebenfalls mit 3 % veranschlagt. Der Übertrag von der Fern- auf die Nahgeometrie mit der Möglichkeit der Bildung falscher Energieabhängigkeiten wird mit 4 % berücksichtigt. Die Korrektur der vertikalen und radialen Volumenabhängigkeit nach Kapitel 4.3.5.2.1 und 4.3.5.2.2 wird jeweils mit 3 % einberechnet, so daß sich die Gesamtunsicherheit des Ansprechvermögens zu 6.5 % ergibt.

Bei der Bestimmung des Ansprechvermögens wurde eine vollständig homogene Aktivierung der Proben in Abhängigkeit von  $x$  und  $r$  vorausgesetzt. Aktivierungsexperimente (Kapitel 5.2.3.1) zeigen, daß dies für die am TSL bestrahlten Targets in Bezug auf die Abhängigkeit von  $r$  gewährleistet ist. Dasselbe gilt auch für die am UCL bestrahlten Proben, die im radialen Plateau des Strahlprofils plaziert waren. Für die am PSI aktivierten Proben (Kapitel 4.2.4) war dies nicht der Fall. Die Wichtung der Efficiency mit einer Konstanten und einer Funktion entsprechend dem Strahlprofil am PSI ergibt jedoch nur einen Unterschied vom 0.1 %, der vernachlässigt wird. Diese kleine Differenz ist die Folge der gegenüber dem Folienradius von  $R = 1.25$  cm größeren Breite der Kastenfunktion des radialen Strahlprofils.

Für alle Targets muß jedoch die Inhomogenität der Aktivierung in Abhängigkeit von der Dicke  $x$  diskutiert werden, die eine Folge der Schwächung des Neutronenflusses über die Dimension der Targetdicke ist (siehe dazu Kapitel 5.2.3.2). Um die Größe dieses Effektes auf die Nettopeakfläche zu untersuchen, wurde ein 6 mm dickes Eisentarget mit der strahlzugewandten und der strahlabgewandten Seite zum Detektor positioniert. Bei einer aus GAMMA-W resultierenden Unsicherheit der Nettopeakfläche von 2 % ergab die Messung der strahlabgewandten Geometrie eine um den Faktor 0.967 geringere Aktivität des sicher zu bestimmenden Nuklides  $^{54}\text{Mn}$ . Diese Meßweise ergibt den doppelten Wert des zu untersuchenden Effektes, der somit für die Targets maximaler Dicke mit etwa 1.5 % abgeschätzt wird und der für die dünneren Targets - den Großteil aller Folien - noch darunter liegt. Daher wird diese Unsicherheit vernachlässigt.

Die Unsicherheiten der Nettopeakfläche und des Ansprechvermögens ergeben gemäß der Fehlerfortpflanzung für die Protonenproben eine Unsicherheit von 4.3 %, für die Responseintegrale der Silber- und Bleifolien einen Wert von 9.3 % und für alle anderen mit Neutronen bestrahlten Targets eine Unsicherheit von 9.1 %, die zu den jeweiligen Aktivitäten  $A_i$  quadratisch addiert wird.

Zusätzlich zu der Unsicherheit der Aktivität müssen noch die Unsicherheiten der weiteren in Gleichung (3.6) eingehenden Größen berücksichtigt werden:

◆ Unsicherheit der Targetkernanzahl

Die Anzahl der Targetkerne wurde aus dem Gewicht nach Gleichung (3.5) berechnet. Eine typische Wägeunsicherheit liegt bei etwa 1 mg. Bei Gewichten der Protonenfolien von etwa 60 mg im Falle der Aluminiumcatcher resultiert eine Unsicherheit von 1 %. Für die mehrere 100 mg schweren Targetelementfolien und die Neutronenfolien mit Gewichten von größer als 1 g, beläuft sich die Unsicherheit jedoch auf kleiner als 1 % und wird vernachlässigt.

◆ Unsicherheit der Aktivitäten der Standardpräparate

Für die Referenzaktivität der zur Efficiencybestimmung benutzten Standards wird von der PTB eine Unsicherheit von 1 % ( $^{22}\text{Na}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ), 1.5 % ( $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) und 2 % ( $^{152}\text{Eu}$ ) angegeben, die mit einer mittleren Unsicherheit von 1.5 % für die Neutronenproben berücksichtigt wird.

◆ Unsicherheit der Flußdichte

Im Falle der Protonenbestrahlungen gehen für die  $\gamma$ -spektrometrische Messung der  $^{22}\text{Na}$ -Aktivität aus Aluminium prinzipiell dieselben Unsicherheiten ein wie zur Bestimmung der Wirkungsquerschnitte. Der Thesis von Gloris [GL98A] folgend wird für diese, entsprechend ihrer einfachen Auswertung, jedoch nur die Unsicherheit der Targetanzahl (1 %) und des Ansprechvermögens (3 %) berücksichtigt. Die Monitorwirkungsquerschnitte tragen bei Benutzung der Daten von Steyn et al. [ST90] für Energien unterhalb von 200 MeV mit 6 % bei, oberhalb davon mit 10 % [TO81].

Für die Neutronenbestrahlungen muß die aus der jeweiligen Meßmethode der Fluenzen resultierende Unsicherheit angerechnet werden, deren Quellen hier nicht im Detail diskutiert werden, da die Messungen nicht selbst vorgenommen wurden. Für die Messung mit dem TFBC ergeben sich etwa 9 % [PR98], für die Experimente am UCL etwa 6 % [SC98A] und für die am PSI etwa 10 % [SC98B].

Als minimale Gesamtunsicherheit ergibt sich für das Responseintegral der leichten Neutronentargets 9.2 %, die zu der aus GAMMA-W resultierenden addiert werden muß. Im Falle der Protonenbestrahlungen berechnet sich diese Minimalunsicherheit für den Wirkungsquerschnitt unterhalb von 200 MeV zu 8.8 % und oberhalb davon zu 11.3 %. Dabei ist zu betonen, daß im Falle der Protonen diese Unsicherheit schon die der Flußdichtebestimmung beinhaltet, im Falle der Neutronen jedoch diese noch quadratisch addiert werden muß.

## 4.6 Möglichkeiten und Grenzen der $\gamma$ -Spektrometrie

In den vorangegangenen Abschnitten wurde ausführlich beschrieben, wie die Aktivitäten bestimmt und unter welchen Annahmen Korrekturen gemacht worden sind. Dabei wurden die Unsicherheitsquellen sowie die Gültigkeitsbereiche der Annahmen diskutiert. Demzufolge wäre ein idealer Meßaufbau eine in ihren geometrischen Maßen möglichst kleine Probe, die in einer Punktgeometrie zum Detektor positioniert wird, für die Koinzidenzeffekte vernachlässigbar sind. Dies wäre nur durch um Größenordnungen höhere Flußdichten der Neutronen zu ermöglichen, wollte man keine Einbuße in der Anzahl der zu messenden Nuklide und ihrer Zählstatistik machen. Aber auch die Spektrometrie mit der verwendeten Nahgeometrie hat noch Potential zur Weiterentwicklung.

Zur Spektrometrie mußte auf die zur Verfügung stehenden Detektoren zurückgegriffen werden. Der gezielte Einsatz von Detektoren mit größerem Ansprechvermögen als die bisher benutzten, würde die Positionierung der Targets in größerem Abstand erlauben. Durch die Annäherung an die Punktgeometrie würden Koinzidenzkorrekturen verringert sowie systematische Fehler vermindert, die durch die notwendige Behandlung als Volumenprobe zustande kommen. Letzteres ist insbesondere für die Berechnung der Selbstabsorption bedeutend. Für den Detektor GE\_UCL, der eine relative Efficiency von 90 % (!) besitzt, wurde eine entferntere Positionierung mit  $d \approx 5$  cm bereits angewandt. Für diese Meßgeometrie liegt die Efficiency bei 1332 keV nur 30 % unterhalb der 1 cm-Geometrie des Detektors GE\_NEU (Tabelle 4.9), so daß keine Einschränkungen in der Zählstatistik hingenommen werden mußten.

Weitere Möglichkeiten bieten sich beim Einsatz von Detektoren, für die die Kristallmaße und deren Positionierung innerhalb der Detektorkappe genau spezifiziert sind. Durch Eingabe des vollständig bekannten Geometriesetups Probe-Kristall in den Monte-Carlo-Code MCNP [BR97A], der die Wechselwirkung von  $\gamma$ -Quanten mit Materie simuliert, wäre eine Berechnung der Efficiency von Volumenproben möglich, die gleichzeitig auch die Selbstabsorption beinhaltet. Dies wird zum Beispiel vollständig mit dem Programm ISOCS [BR97B] durchgeführt, das auf mit MCNP simulierte Setups von Quelle-Detektor zurückgreift. Im Vergleich zu den experimentellen Werten zeigt sich eine Übereinstimmung mit den Rechnungen von 5-10 % ( $E > 150$  keV) beziehungsweise 10-20 % ( $E < 150$  keV).

Ein Vergleich der so berechneten Efficiencies mit den experimentellen dieser Arbeit wäre sehr interessant. Darüber hinaus können Parameterstudien zur Berechnung von Ansprechvermögen von Punktquellen in Abhängigkeit ihrer Positionierung vor dem Detektor zur Weiterentwicklung der in dieser Arbeit benutzten Parametrisierungen der Volumenabhängigkeiten dienen, auch eine Behandlung von Koinzidenzen wäre denkbar. Der Nachteil der direkten Nutzung von Monte-Carlo-Programmen ist neben der arbeitsintensiven Einarbeitung in die komplexen Strukturen solcher Programme deren starke Inanspruchnahme von Rechnerkapazitäten.

Aber auch einfachere Ansätze erlauben bei bekannter Probe-Kristall Geometrie schon die Berechnung der totalen Efficiency in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Werten [DE90]. Eine Verbesserung der totalen Efficiency würde durch den Einsatz weiterer Standardpräparate wie  $^{88}\text{Y}$  ( $T_{1/2} = 106.6$  d) und  $^{203}\text{Hg}$  ( $T_{1/2} = 46.6$  d) ermöglicht. Wegen der kurzen Halbwertszeiten sind diese Präparate

jedoch nur zeitlich begrenzt nutzbar. Eine ständige Neuanschaffung dieser Präparate zur regelmäßigen Kontrolle der Ansprechvermögen wie auch der Kauf der oben angesprochenen leistungsstarken Detektoren verbieten jedoch die begrenzten Haushaltsmittel.

Die Grenzen der in der beschriebenen Art und Weise durchgeführten  $\gamma$ -Spektrometrie ergeben sich aus den folgenden Überlegungen. Im Vergleich zu den Protonenproben zeigen die Aktivitäten zum Teil eine nicht so gute Übereinstimmung der Linien untereinander. Eine Ursache dafür können geringe, zur Auswertung herangezogene Peakflächen sein, die zum Teil bei nur 200-300 Impulsen lagen - insbesondere für die kurzlebigen, direkt nach der Bestrahlung detektierten Nuklide war dies der Fall. Aus demselben Grund streuen die Aktivitäten einer Linie stärker. Auch die Koinzidenzkorrektur bei komplexen Zerfallsschemata kann mit erhöhten Unsicherheiten behaftet sein. Darüber hinaus konnte für einige Nuklide überhaupt keine Koinzidenzkorrektur vorgenommen werden.

All diese Faktoren führen zu einer erhöhten Unsicherheit bei der Auswahl der Aktivitäten zur Berechnung des Responseintegrals. Um Ursachen für Unsicherheiten zu begegnen, sollte der vertikale Abstand zur Detektorkappe mindestens 1 cm sein und die Maße der Proben sollten nicht ( $h = 6$  mm;  $R = 1$  cm) beziehungsweise ( $h = 4$  mm;  $R = 1.25$  cm) überschreiten. Mit den erarbeiteten Methoden ist die Bestimmung der Aktivitäten dann mit einer Genauigkeit von etwa 10% möglich.

## 5 Experimentelle Ergebnisse

In diesem Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse vorgestellt. Diese sind im ersten Teil die Produktionswirkungsquerschnitte der durch Protonen in den bestrahlten Proben erzeugten Restkerne und zum anderen die Resultate der Untersuchungen zu den durchgeführten Neutronenbestrahlungen.

### 5.1 Ergebnisse der Protonenbestrahlungen

Die Bestrahlung der in dieser Arbeit ausgewerteten Elemente Titan, Eisen und Nickel erfolgte hauptsächlich zur Überprüfung älterer Daten sowie zur Bereitstellung von Targets zur Messung von Restkernen mittels der nicht-zerstörungsfreien Methoden der AMS und der Edelgasmassenspektroskopie. In dieser Arbeit wurde der Schwerpunkt auf die Messung und Vervollständigung der Anregungsfunktionen der nur mit einigem experimentellen Aufwand detektierbaren Nuklide  $^{44}\text{Ti}$  und  $^{55}\text{Fe}$  gelegt. Auf die hierbei angewendeten experimentellen Methoden wurde in Kapitel 4.3.9 und 4.4 eingegangen. Entsprechend wird im folgenden die Priorität der Darstellung auf die experimentellen Ergebnisse hierzu gelegt. Auf die ebenfalls bestimmten Wirkungsquerschnitte der Kernreaktionen zur Produktion der zusätzlich dazu gemessenen Restkerne wird daher nur kurz eingegangen.

#### 5.1.1 Wirkungsquerschnitte für die Targetelemente Ti, Fe und Ni

Zur Untersuchung der Restkernproduktion aus den Targetelementen Titan, Eisen und Nickel wurden insgesamt 225  $\gamma$ -Spektren ausgewertet. Daraus wurden 338 Wirkungsquerschnitte für 59 Reaktionen bestimmt, die in Anhang B.3 aufgeführt sind.

Auf den Vergleich der neuen Daten dieser Arbeit mit Wirkungsquerschnitten in der Literatur wird im folgenden nicht weiter eingegangen, da dazu bereits Untersuchungen [LU93, BO89, GL93] im Rahmen unserer Arbeitsgruppe vorliegen.

Insgesamt bestätigen die Daten dieser Arbeit die älteren Werte unserer Arbeitsgruppe. Abweichungen treten vor allem durch die Verwendung unterschiedlicher Monitorwirkungsquerschnitte sowie durch den Einfluß von Sekundärteilchen auf. Dies wird im folgenden exemplarisch anhand der Reaktion  $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,xn)^{48}\text{V}$  (Abbildung 5.1) diskutiert.

Im Energiebereich zwischen 80 und 200 MeV existieren Diskrepanzen zwischen den Daten dieser Arbeit

und denen von Michel et al. [MI84], die etwa 10 % niedriger liegen. Dies wird bei allen Reaktionen deutlich und ist für die Reaktion  $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,xn)^{48}\text{V}$  in Abbildung 5.1 vergrößert im Ausschnitt gezeigt. Die Erklärung dafür findet sich in der Bestimmung der Flußdichte, die in [MI84] mit den Monitorwirkungsquerschnitten nach Tobaillem [TO81] ermittelt wurde. Diese liegen im Energiebereich zwischen 100 MeV und 200 MeV bis zu 7 % unterhalb den dieser Arbeit zugrundeliegenden von Steyn et al. [ST90].

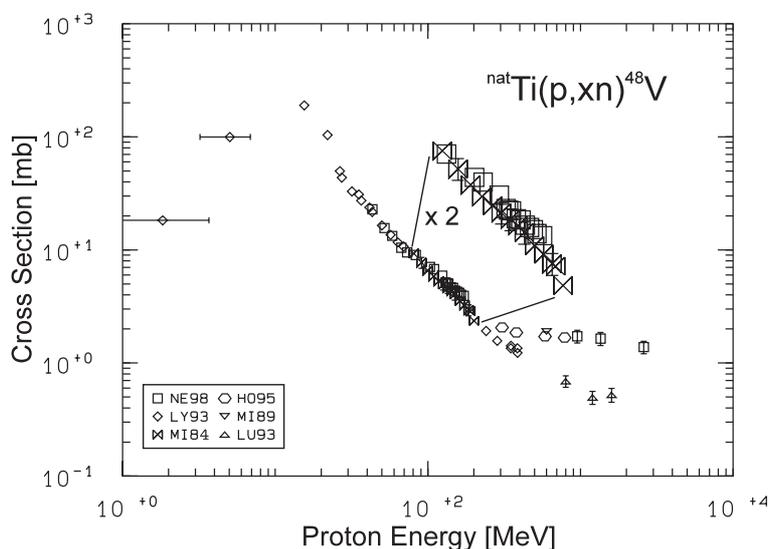


Abbildung 5.1 Anregungsfunktion der Reaktion  $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,xn)^{48}\text{V}$ . Dargestellt sind nur Daten unserer Arbeitsgruppe. NE98 bezeichnet die Werte dieser Arbeit.

Das Aufsplitten der Daten oberhalb von 200 MeV in zwei Zweige derart, daß sich ein um etwa einen Faktor fünf monoton abfallender Verlauf (Datenpunkte [LU93, LY93]) und ein nur um einen Faktor zwei variierender ergibt, bedarf einer besonderen Erklärung. Die bei den Kernreaktionen freigesetzten Sekundärteilchen, vorwiegend Protonen und Neutronen, lösen wiederum Kernreaktionen aus und überlagern so die primäre Nuklidproduktion. Da die Flußdichte der sekundären Teilchen mit der Massenbelegung der bestrahlten Stacks ansteigt, wurde versucht, die Massenbelegung für die hochenergetischen Bestrahlungen möglichst gering zu halten [GL98A]. Dennoch lassen sich solche Interferenzen nicht ganz unterdrücken, wie das vorliegende Beispiel anhand der Daten des oberen Zweiges zeigt.

Deshalb erfolgt die Erzeugung von  $^{48}\text{V}$  nicht nur durch die primären Protonen, sondern auch durch niederenergetische sekundäre Protonen, die trotz ihrer geringen Flußdichten durch die in Abbildung 5.1 gezeigten hohen Wirkungsquerschnitte im Niederenergetischen nach Gleichung (1.1) einen signifikanten Anteil an der Produktion haben. Die Werte des unteren Zweiges sind für die Produktion durch diese sekundären Protonen korrigiert, die des oberen nicht. Die Unsicherheiten solcher Korrekturen hängen allgemein von der Genauigkeit der verwendeten Anregungsfunktionen der Protonen- und Neutronen-induzierten Reaktionen ab. Sie können nicht unerheblich sein und sind in [LU93] ausführlich diskutiert.

Da der Hauptteil der Produktion des  $^{48}\text{V}$  durch die (p,n)-Reaktion am  $^{48}\text{Ti}$  (Tabelle 5.1) herrührt, ist der korrigierte, stärker abfallende Verlauf physikalisch sinnvoller. Denn die (p,n)-Reaktion läuft bei hohen Energien vorwiegend in der peripheren Zone des Kerns ab, da sonst eine ausgeprägte Kaskade stattfinden würde. Die Reaktion wird so mit zunehmender Projektilenergie unwahrscheinlicher, da die de Broglie-Wellenlänge des Protons mit der Energie abnimmt. Eine Korrektur der Daten dieser Arbeit auf die sekundäre Produktion hin konnte nicht erfolgen, da die dafür erforderlichen Programmsysteme nicht zur Verfügung standen. Prinzipiell sollte eine solche für diese, auf die sekundäre Produktion anfälligen Reaktionen noch durchgeführt werden, um die Verläufe im Hochenergetischen richtig zu bestimmen.

Tabelle 5.1 Natürliche Isotopenzusammensetzung von Titan.

$^{46}\text{Ti}$	8.0 %
$^{47}\text{Ti}$	7.3 %
$^{48}\text{Ti}$	73.8 %
$^{49}\text{Ti}$	5.5 %
$^{50}\text{Ti}$	5.4 %

### 5.1.2 Das Produktnuklid $^{44}\text{Ti}$

Für das Produktnuklid  $^{44}\text{Ti}$  (Kapitel 4.3.9) wurden insgesamt 37 Wirkungsquerschnitte bestimmt (Anhang B.2), wovon 21 auf das Targetelement Titan und jeweils acht auf die Produktion aus Eisen und Nickel entfallen.

Abbildung 5.2 zeigt die Wirkungsquerschnitte aus Titan.  $^{44}\text{Ti}$  wird aus dem im natürlichen Isotopengemisch (Tabelle 5.1) vorliegenden Titan durch (p,pxn)-Reaktionen erzeugt, wobei zwei bis sechs Neutronen entfernt werden. Dementsprechend weist die Anregungsfunktion des Niederenergieprodukts oberhalb der Schwellenenergien ausgeprägte Verdampfungsmaxima auf, oberhalb derer die Wirkungsquerschnitte abnehmen. Dieser Abfall läßt sich vor allem durch das Öffnen neuer Reaktionskanäle mit zunehmender Protonenenergie erklären.

Für den Energiebereich der Verdampfungsmaxima zwischen 30 und 150 MeV bestätigen die Daten die-

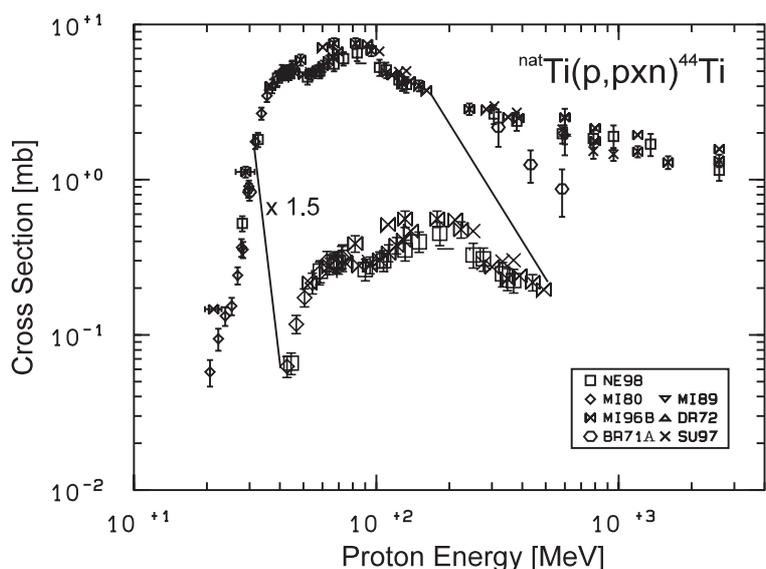


Abbildung 5.2 Anregungsfunktion der Reaktion  $^{nat}\text{Ti}(p,pxn)^{44}\text{Ti}$ . NE98 sind die Daten dieser Arbeit.

ser Arbeit den unteren Verlauf der von Michel et al. [MI96B, DA94] veröffentlichten Werte. Die Datenbasis von Michel et al. [MI96B] setzt sich aus den Werten zweier Quellen zusammen, den Wirkungsquerschnitten der Arbeit Daunkes [MI96B, DA94] sowie den Daten von Ohnimus [MI96B, OH90]. Für die in diesem Bereich höher liegenden Werte von Ohnimus [MI96B, OH90] wird daher auf Fehler in der Bestimmung des  $^{44}\text{Ti}$  geschlossen.

Der untere Verlauf ist auch physikalisch sinnvoll, da es infolge der Isotopenzusammensetzung des Titan im Niederenergetischen entsprechend der verschiedenen Reaktionskanäle mehrere Verdampfungsmaxima gibt. Dadurch wird der Abfall des ersten Verdampfungsmaximums bei etwa 35 MeV durch den sich bei 44.1 MeV öffnenden (p,p3n)-Kanal am  $^{48}\text{Ti}$  überlagert und ein erneuter Anstieg der Anregungsfunktion bewirkt. Daß die Daten dieser Arbeit im Maximum bei etwa 65 MeV um etwa 5 bis 10 % niedriger liegen, erklärt sich erneut durch die in dieser Arbeit benutzten Monitorwirkungsquerschnitte von Steyn et al. [ST90] gegenüber den von Daunke [DA94] angewendeten von Tobaillem [TO81].

Zu höheren Energien ( $E_p > 200$  MeV) hin ergibt sich insgesamt eine gute Übereinstimmung mit den Werten Daunkes [MI96B, DA94], die in diesem Energiebereich jeweils den unteren Zweig der Daten von Michel et al. [MI96B] darstellen. Dies ist insbesondere deshalb zu erwähnen, da die Daten [MI96B, DA94] für Sekundärteilchen korrigiert sind, im Gegensatz dazu die Werte dieser Arbeit und auch die Wirkungsquerschnitte des höheren Verlaufs der Michel et al. Daten [MI96B, OH90] nicht. Daraus ergibt sich der Grund des Offsets der Ohnimus Werte [MI96B, OH90] zu denen Daunkes [MI96B, DA94].

Die Wirkungsquerschnitte dieser Arbeit aus den Saclay-Experimenten mit dem neuen Stackdesign [GL98A] stimmen mit den auf Sekundärteilchen korrigierten Werten Daunkes [MI96B, DA94] gut überein und deuten an, daß der Einfluß der Sekundärteilchen im Vergleich zu den älteren Bestrahlungen zumindest für diese Reaktion zwischen 200 MeV und 800 MeV zu vernachlässigen ist. Oberhalb von 1 GeV lassen sich dagegen keine eindeutigen Aussagen treffen, da die Werte bei 1 GeV und 1.4 GeV einen höheren Verlauf andeuten, der Datenpunkt bei 2.6 GeV jedoch im Rahmen der Unsicherheit mit dem Daunkes übereinstimmt. Auch hier wird nur eine exakte Berechnung der Produktion durch Sekundärteilchen zur Beurteilung weiterhelfen.

Die Anregungsfunktionen zur Produktion von  $^{44}\text{Ti}$  aus Eisen und Nickel (Abbildung 5.3) zeigen den typischen Verlauf eines Hochenergieproduktes, das vorwiegend durch Spallationsreaktionen erzeugt wird. Infolge der vielen Möglichkeiten im Ausgangskanal ergibt sich ein breites Maximum, das für Eisen zwischen 0.8 GeV und einem GeV

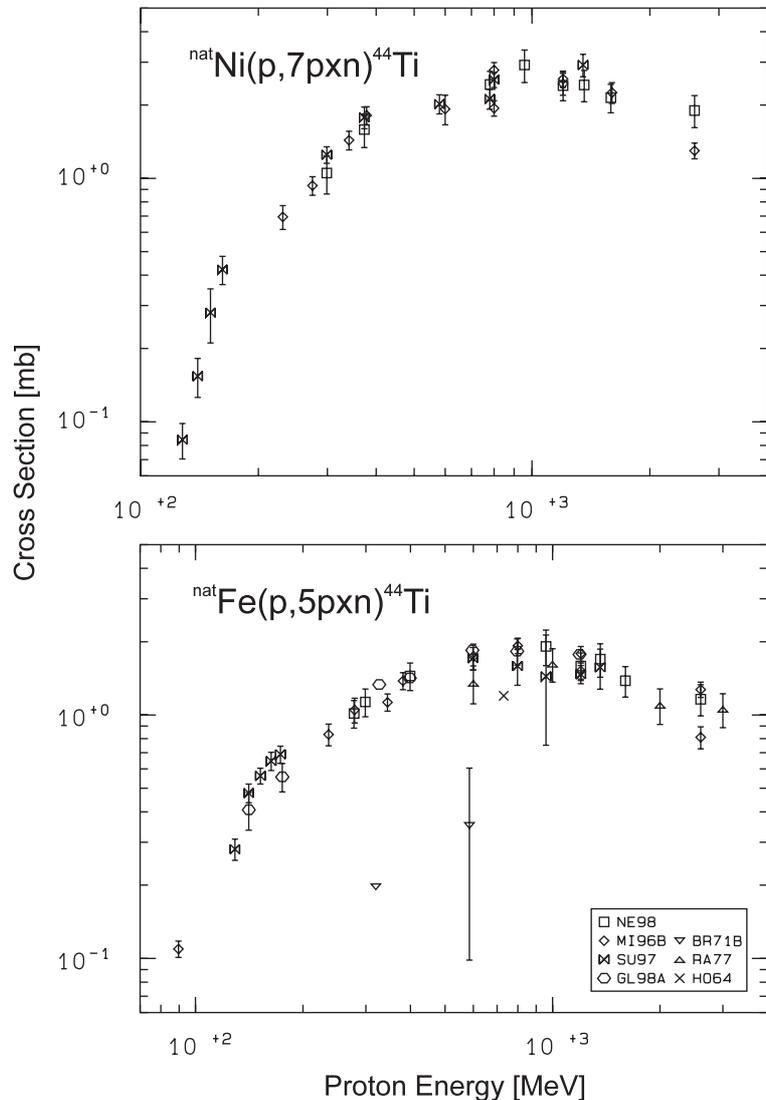


Abbildung 5.3 Anregungsfunktionen der Reaktionen  $^{nat}\text{Fe}(p,5pxn)^{44}\text{Ti}$  und  $^{nat}\text{Ni}(p,7pxn)^{44}\text{Ti}$ . NE98 sind die Daten dieser Arbeit.

liegt, für Nickel bei etwa einem GeV. Da die Ladungsverteilung der Restkerne bei diesen Energien in der ersten, schnellen Reaktionsphase festgelegt wird, verschiebt sich das Maximum mit größer werdender Protonenzahl im Ausgangskanal zu höheren Energien.

Die Wirkungsquerschnitte dieser Arbeit bestätigen in der Regel die Werte unserer Arbeitsgruppe von Gloris [GL98A], Daunke [MI96B, DA94], Ohnimus [MI96B, OH90] und Sudbrock [SU97]. Allein die Werte bei 2.6 GeV streuen stärker, wofür die Ursache nicht klar ist, da Einflüsse von Sekundärteilchen für diese Reaktionen infolge der hohen Schwellenenergien ausgeschlossen werden können. Wie auch für das Targetelement Titan müssen die älteren Daten von Brodzinski et al. [BR71A, BR71B] allein schon wegen ihres unphysikalischen Verlaufes verworfen werden, während sich die Daten von Raisbeck et al. [RA77] im Rahmen der Unsicherheiten in die Anregungsfunktion einfügen.

### 5.1.3 Das Produktnuklid $^{55}\text{Fe}$

Die mit der Messung von Wirkungsquerschnitten für  $^{55}\text{Fe}$  verbundenen Schwierigkeiten wurden in Kapitel 4.4 diskutiert. Die zur Produktion von  $^{55}\text{Fe}$  aus Eisen in dieser Arbeit bestimmten 18 Wirkungsquerschnitte, die Abbildung 5.5 zeigt, sind daher die ersten im Rahmen unserer Arbeitsgruppe (Anhang B.1). Da  $^{55}\text{Fe}$  größtenteils aus dem zu 91.72 % im natürlichen Isotopengemisch enthaltenen  $^{56}\text{Fe}$  über die (p,pn)-Reaktion gebildet wird und die weiteren stabilen Eisenisotope  $^{57}\text{Fe}$  und  $^{58}\text{Fe}$  infolge des geringen Anteils am natürlichen Isotopengemisch von zusammen 2.48 % nur einen niedrigen Beitrag zur Produktion haben, sind ebenfalls die auf die natürliche Isotopenzusammensetzung umnormierten Wirkungsquerschnitte am  $^{56}\text{Fe}$  aus [JE70, RE63, RE68, WE83] eingezeichnet.

Für Protonenenergien unterhalb von 100 MeV liegen nur die Werte von Jenkins und Wain [JE70] zum Vergleich vor. Um die Qualität ihrer Daten im Vergleich zu denen unserer Arbeitsgruppe besser einschätzen zu können, sind in Abbildung 5.4 die ebenfalls von ihnen am  $^{56}\text{Fe}$  gemessenen Wirkungsquerschnitte zur Produktion von  $^{55,56}\text{Co}$  mit den Werten unserer Gruppe aufgetragen. Die auf die natürliche Isotopenzusammensetzung umnormierten Daten von Jenkins und Wain [JE70] geben zwar den Verlauf der Anregungsfunktion wieder, weichen aber von den Wirkungsquerschnitten unserer Gruppe um bis zu 25 % ab. Die Gründe für diese Diskrepanzen sind in der Verwendung älterer Kerndaten, der Messung auf NaI(Tl)-Detektoren und der begrenzten Rechnerunterstützung zur Auswertung der Spektren zu sehen.

Unter der Maßgabe dieses Vergleiches nach Abbildung 5.4 und unter Berücksichtigung dessen, daß Jenkins und Wain  $^{55}\text{Fe}$  nach chemischer Abtrennung mit einem NE220 Flüssigszintillator nachwies, ist die Übereinstimmung der Daten dieser Arbeit zur Produktion von  $^{55}\text{Fe}$  mit denen von Jenkins und Wain akzeptabel, da die Daten ihrer Arbeit im Maximum bei etwa 25 MeV 20 % unter denen dieser Arbeit liegen. Allein die von [JE70] benutzte Halbwertszeit von 2.6 a für das  $^{55}\text{Fe}$  erniedrigt die Daten um etwa 5 % gegenüber dieser Arbeit ( $T_{1/2} = 2.73 \text{ a}$  [PF95]).

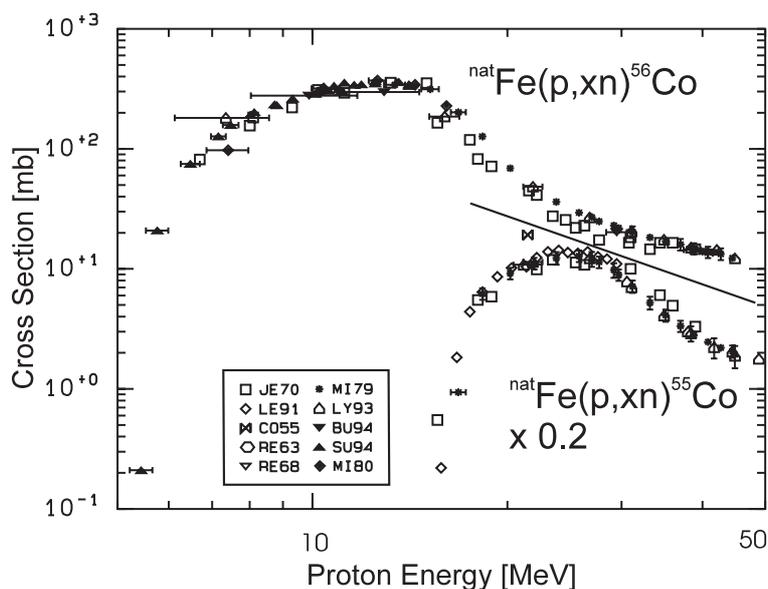


Abbildung 5.4 Anregungsfunktionen der Reaktionen  $^{\text{nat}}\text{Fe}(p,xn)^{55,56}\text{Co}$ . Die Daten aus [JE70, LE91, CO55, RE63, RE68] sind auf die natürliche Zusammensetzung umnormierte Werte der Reaktionen am  $^{56}\text{Fe}$ .

Oberhalb von 200 MeV deuten alle Wirkungsquerschnitte zur Produktion von  $^{55}\text{Fe}$  auf ein Plateau bei etwa 40-45 mb hin. Diese Aussage wird insbesondere durch die Daten von Raisbeck et al. [RA79] gestützt, die zwischen 0.6 und 23 GeV (hier nur bis 3 GeV gezeigt) konstante Werte auf diesem Niveau messen. Diese Daten sind allerdings relativ zur Produktion von  $^{54}\text{Mn}$  mit benutzten Wirkungsquerschnitten von 33.3 mb (0.6 GeV) und 36.1 mb (1 GeV) gemessen. Diese Querschnitte liegen gegenüber den neueren Werten von Gloris [GL98A] mit 42.1 mb (0.6 GeV) und dieser Arbeit mit 41.1 mb (1 GeV) jedoch um bis zu 26 % niedriger.

Die Umnormierung auf die neueren Daten erhöht die  $^{55}\text{Fe}$ -Daten entsprechend, so daß sich kein eindeutiger Verlauf im Hochenergetischen ergibt, da der Wert bei 2.0 GeV keiner Änderung bedarf.

Des weiteren ist zu bedenken, daß die Produktion des  $^{55}\text{Fe}$  durch die (p,pn)-Reaktion am  $^{56}\text{Fe}$  durch Sekundärteilchen beeinflusst werden kann - in ähnlicher Art und Weise wie es am Beispiel der Reaktion  $^{\text{nat}}\text{Ti}(p,xn)^{48}\text{V}$  (Abbildung 5.1) gezeigt wurde. Da die ausgewerteten Folien bei 300 und 400 MeV als Einzelfolien (First-Targets) [GL93] vor den eigentlichen Stacks bestrahlt wurden, kann bei ihnen die Produktion durch sekundäre Teilchen ausgeschlossen werden. Dies gilt jedoch nicht für den Wert bei 1.2 GeV, der einen eventuellen Abfall der Anregungsfunktion in diesem Bereich verdecken könnte. Die Durchführung der Korrektur für die Sekundärteilchen wird darüber Aufschluß geben.

Zusammenfassend zeigen die Wirkungsquerschnitte zur Produktion des erstmals in unserer Arbeitsgruppe gemessenen Nuklides  $^{55}\text{Fe}$  unter Berücksichtigung der gänzlich anderen als in der Literatur üblichen Meßmethode (Kapitel 4.4) mit bisher existierenden Daten eine gute Übereinstimmung. Weitere Messungen müssen dazu beitragen, den Verlauf der Anregungsfunktion zu ergänzen und - insbesondere im Hochenergetischen - zu überprüfen.

### 5.1.4 Wirkungsquerschnitte für Edelgase

Nach Abschluß der zerstörungsfreien  $\gamma$ -spektrometrischen Messung der radioaktiven Nuklide werden die bestrahlten Targets für die Detektion langlebiger Restkerne mit AMS oder von Edelgasen mit konventioneller Massenspektrometrie zur Verfügung gestellt. Hierfür ist es nötig, Hand in Hand mit anderen Gruppen zu arbeiten, da einige Forschungsziele nur gemeinsam verfolgt werden können.

Die Messungen der Edelgase werden im Rahmen von Kollaborationen zum einen an der ETH - Abteilung Isotopengeologie, Zürich (Schweiz), zur Produktion der leichten Edelgase Helium, Neon und Argon durchgeführt. Zum anderen liegt neben den leichten Edelgasen der Schwerpunkt der Messungen am Centre d'Etudes Nucléaires Bordeaux Gradignan (CENBG), Bordeaux (Frankreich), vor allem auf den schweren Edelgasen Krypton und Xenon aus ihren kosmochemisch relevanten Haupttargetelementen Rubidium, Strontium, Yttrium und Zirkon beziehungsweise Barium und Lanthan.

Der Beitrag zur Messung von Wirkungsquerschnitten zur Produktion von Edelgasen im Rahmen dieser Arbeit bestand in den folgenden zwei Punkten:

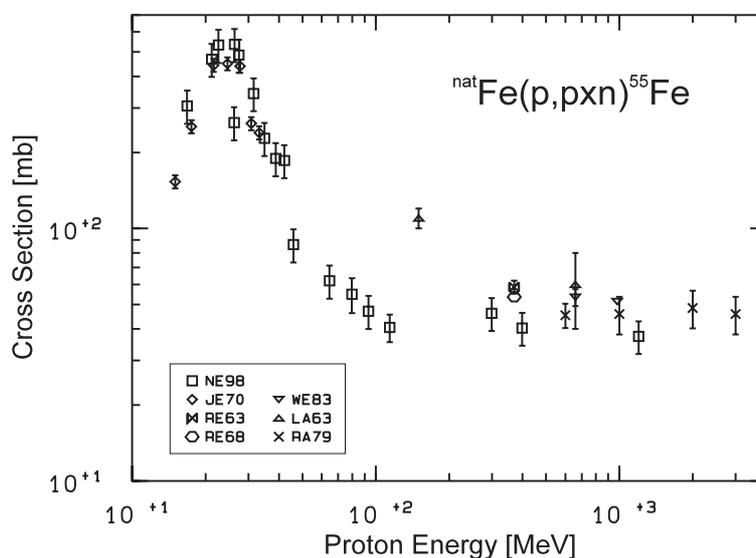


Abbildung 5.5 Anregungsfunktion der Reaktion  $^{\text{nat}}\text{Fe}(p,pxn)^{55}\text{Fe}$ . NE98 sind die Daten dieser Arbeit. Die Werte [JE70, RE63, RE68, WE83] sind auf die natürliche Zusammensetzung des Eisen umnormierte Werte der Reaktion am  $^{56}\text{Fe}$ .

- ◆ Initiierung von Messungen  
Im Laufe der Untersuchungen zur Produktion kosmogener Nuklide durch die SCR zeigte sich, daß sich die Datenlage zur Durchführung der Modellrechnungen zur Produktion der leichten Edelgase durch die Protonen-induzierten Reaktionen an den Elementen Aluminium, Magnesium und Silizium unbefriedigend darstellte. Da diese Wirkungsquerschnitte die Haupteingangsdaten für die SCR-Modellrechnungen sind, wurde die Messung von Wirkungsquerschnitten für die angegebenen Elemente angeregt; die Ergebnisse sind in [LY98A] veröffentlicht.
- ◆ Berechnung von Wirkungsquerschnitten und deren Sekundärteilchenkorrektur  
Für die Messungen am CENBG des schweren Edelgases Krypton wurde die Berechnung der Wirkungsquerschnitte aus den gemessenen Gehalten selbst vorgenommen. Außerdem wurde für die Experimente, für die eine Korrektur der Daten für die Produktion durch sekundäre Protonen und Neutronen nötig und möglich war, die Sekundärteilchenkorrektur durchgeführt. Die Ergebnisse dazu sind für Krypton in Gilibert et al. [GI98] veröffentlicht.

## 5.2 Ergebnisse der Neutronenbestrahlungen

Die in dieser Arbeit am TSL und UCL durchgeführten Bestrahlungsexperimente mit Neutronen mittlerer Energien stellen die ersten dieser Art dar, die von unserer Arbeitsgruppe durchgeführt wurden. Deshalb sollen analog der ausführlichen Behandlung der experimentellen Aspekte (Kapitel 4.2 und 4.3) die Ergebnisse ebenso detailliert vorgestellt werden. Den Hauptteil dieser stellen allgemeine Gesichtspunkte dar (Kapitel 5.2.3), die zum Verständnis der bei allen Experimenten aufgetretenen Effekte nötig sind.

Das Ziel der Aktivierungsexperimente ist es, Anregungsfunktionen der Neutronen-induzierten Reaktionen zur Produktion der Restkerne aus den jeweiligen Targetelementen zu bestimmen. Dieses erfolgt mit Hilfe des Least-Squares-Adjustment (Kapitel 3.2) jedoch erst, wenn für *alle* geplanten und durchgeführten Experimente, die Responseintegrale als Ergebnisse vorliegen. Diese Experimentreihe kann infolge der Bestrahlungs- und Messkapazitäten jedoch nur sinnvoll über einen Zeitraum von mehreren Jahren durchgeführt werden und ist mit dem Ende dieser Arbeit noch nicht abgeschlossen.

Die gemessenen Responseintegrale, der Hauptteil der experimentellen Ergebnisse, haben als Datenpunkte *einzelner* Bestrahlungen wenig Aussagekraft, so daß in der folgenden Diskussion nur begrenzt auf sie eingegangen wird (Kapitel 5.2.5). Lediglich für das Produkt  $^{105}\text{gAg}$  aus Silber liegen schon jetzt vier Responseintegrale bei unterschiedlichen Peak-Energien mit experimentell ausgemessenen spektralen Flußdichten vor, so daß exemplarisch für den weiteren Fortgang der Arbeit das Resultat einer ersten Entfaltung vorgestellt wird (Kapitel 5.2.5).

### 5.2.1 Ergebnisse des Testexperimentes

#### 5.2.1.1 Wahl der Bestrahlungsposition

Bestrahlungen mit Neutronen haben zum Ziel, sowohl für langlebige Nuklide wie  $^{10}\text{Be}$  ( $T_{1/2} = 1.6 \text{ Ma}$ ) oder  $^{26}\text{Al}$  ( $T_{1/2} = 0.716 \text{ Ma}$ ) als auch für Nuklide mit geringen Produktionswirkungsquerschnitten Aktivitäten zu erzeugen, die mit konventionellen Meßmethoden - in unserer Arbeitsgruppe  $\gamma$ -Spektrometrie und AMS - nachgewiesen werden können. Mit dem ersten Testexperiment TEST ( $E_p = 76.4 \text{ MeV}$ ) an der Neutronenbeamline des TSL sollte daher festgestellt werden, welches die beste Bestrahlungsposition in Bezug auf die nachweisbare Produktion eines möglichst breiten Spektrums an Nukliden ist. An der Neutronenbeamline des TSL (Abbildung 4.1) steht hierfür zum einen die Position direkt hinter dem Lithiumtarget (Position #2) oder aber die Position in der Blue Hall (Position #1) zur Wahl. Dazu ist zu bedenken, daß für Position #1 zum einen die lange Flugstrecke die Anwendung von TOF-Techniken zur Messung der spektralen Flußdichte erlaubt und zum anderen das Neutronenfeld nach Passieren der drei Kollimatoren gut definiert ist.

Diesen Vorteilen steht der Nachteil entgegen, daß die Flußdichte infolge der langen Distanz vom Lithiumtarget zum Stack entsprechend gering ist. Dem Abstandsquadratgesetz folgend sollte die Flußdichte der Neutronen an Position #2 um einen Faktor  $(873 \text{ cm}/159 \text{ cm})^2 \approx 30$  höher sein. Die Berücksichtigung der Schwächung der Neutronen in Luft [SC98B] ergibt dagegen nur eine weitere Erhöhung um 3.47 %. Nach der Aktivierungsgleichung (3.2) werden an Position #2 somit entsprechend mehr Restkerne erzeugt, wodurch der Nachweis dieser erleichtert wird. Nachteilig für Position #2 ist jedoch, daß ein nicht wohldefiniertes Neutronenfeld vorliegt, für das die Methoden zur Bestimmung seiner spektralen Flußdichte noch erarbeitet werden müssen.

Die experimentellen Ergebnisse von TEST liefern für die fünf an Position #2 bestrahlten Targetelemente insgesamt Meßwerte für Responseintegrale aus 27 unterschiedlichen Reaktionen - läßt man die Aktivitäten der exothermen Reaktionen außen vor, da sie undefiniert Anteile induziert durch Raumuntergrundneutronen enthalten können. Ein Großteil der gemessenen Reaktionen ist in Abbildung 5.6 angegeben. Die Halbwertszeiten der Produkte decken den Bereich weniger Stunden ( $^{61}\text{Cu}$  ( $T_{1/2} = 3.4 \text{ h}$ ),  $^{65}\text{Ni}$  ( $T_{1/2} = 2.52 \text{ h}$ )) bis hin zu mehreren Jahren ( $^{22}\text{Na}$  ( $T_{1/2} = 2.6 \text{ a}$ ),  $^{60}\text{Co}$  ( $T_{1/2} = 5.272 \text{ a}$ )) ab und schließen so im Rahmen der experimentellen Möglichkeiten dieser Arbeit alle Halbwertszeiten der mit  $\gamma$ -Spektrometrie nachweisbaren Produkte für diese Targetelemente ein.

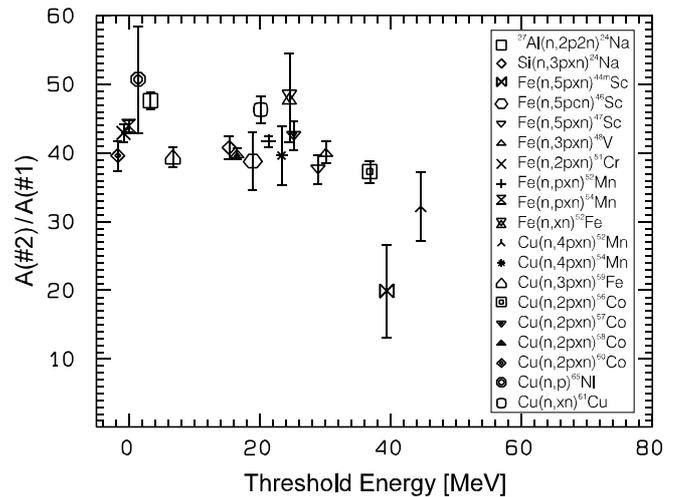


Abbildung 5.6 Verhältnisse der spezifischen Aktivitäten, die an Position #2 und #1 gemessen wurden.

Der Vergleich mit den Produkten Protonen-induzierter Reaktionen an denselben Targetelementen zeigt außerdem, daß für Protonenenergien kleiner als 75 MeV nur für ein Nuklid mit einer Halbwertszeit im angesprochenen Bereich zusätzlich zu den in TEST nachgewiesenen Reaktionen Wirkungsquerschnitte in der Literatur angegeben sind. Da diese Wirkungsquerschnitte für die Protonen-induzierte Produktion von  $^{51}\text{Cr}$  aus Kupfer kleiner als 0.5 mb sind, ist der fehlende Nachweis für das TEST-Experiment durch die entsprechend niedrigen Produktionswirkungsquerschnitte zu erklären.

Nach Abbildung 5.6 sind an Position #1 die spezifischen Aktivitäten der Produktnuklide etwa um einen Faktor 40 geringer als an Position #2. Dabei wurden bereits 81 % der Produktnuklide an Position #2 mit spezifischen Aktivitäten von nur 0.1 bis 70 Bq/g nachgewiesen; eine weitere Reduzierung um einen Faktor 40 würde die Schwierigkeiten der Aktivitätsbestimmungen durch geringere Nettopeakflächen oder entsprechend längere Meßzeiten nach dem im Kapitel 4.3.3 und 4.3.4 besprochenen nicht unerheblich erhöhen.

So mußten für langlebige Nuklide in Folien der Position #1 zur Messung einer Nettopeakfläche von 1000 Impulsen Meßzeiten bis zu einer Woche veranschlagt werden, was für größere Probenzahlen auf Dauer zu einem Engpaß für die zur Verfügung stehende Detektorkapazität geführt hätte. Da die Aktivitäten für die Targets von Position #1 nur so gering sind, wurden zudem nur 72 % der für Position #2 gemessenen Restkerne detektiert.

Zusätzlich zur  $\gamma$ -spektrometrischen Messung wurden das Quarz- und Siliziumtarget der Position #2 chemisch aufgearbeitet, um in ihnen  $^{10}\text{Be}$  und  $^{26}\text{Al}$  mit AMS zu messen [SU97]. Die gemessenen Isotopenverhältnisse  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  in Silizium und Quarz heben sich deutlich vom Untergrund ab und zeigen so die prinzipielle Machbarkeit, diese Radionuklide mit AMS für Targets in Position #2 zu detektieren. Die Messung für  $^{26}\text{Al}$  steht noch aus, sollte aber nach den Ergebnissen für  $^{10}\text{Be}$  prinzipiell möglich sein.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß Aktivierungsexperimente in der Marble Hall nur für eine dem Lithiumtarget nahe Position Hall das gewünschte breite Spektrum an Nukliden erzeugen, so daß eine ortsfeste Bestrahlungskammer (Kapitel 4.2.2.2) dementsprechend in der Marble Hall installiert wurde.

### 5.2.1.2 Aussagen über die spektrale Flußdichte und den Raumuntergrund

Das Verhältnis der Aktivitäten an Position #2 zu denen an Position #1,  $A(\#2)/A(\#1)$ , das in Abbildung 5.6 in Abhängigkeit der Schwellenenergie  $E_s$  der Reaktionen gezeigt ist, gibt Auskunft darüber, wie sich der Absolutwert der Flußdichte der Neutronen von der vorderen Position #2 zur hinteren Position #1 ändert. Der Mittelwert der Verhältnisse in Abbildung 5.6 (ohne  $^{52}\text{Fe}$  aus Fe sowie  $^{61}\text{Cu}$  und  $^{65}\text{Ni}$  aus Cu; siehe unten) beträgt  $39.4 \pm 6.2$  und weicht somit von dem nach dem Abstandsgesetz erwarteten Verhältnis von 30 signifikant ab. Zur Erklärung dieser Diskrepanz wird eine fehlerhafte Bestimmung des Abstandes des Stacks #2 vom Lithiumtarget ausgeschlossen, da der Stack dann außerhalb der Meßunsicherheit um immerhin 24 cm näher zum Lithiumtarget hätte stehen müssen.

Eine Erklärung für das höhere Verhältnis ergibt sich aus dem mit dem TFBC in der Blue Hall an Position #1 gemessenen Strahlprofil in Abhängigkeit vom radialen Abstand zur Strahlachse unter Berücksichtigung dessen, daß es sich um ein kollimiertes und nicht um ein freies Neutronenfeld handelt. Es zeigte sich, daß sich das Strahlprofil nicht zeitlich konstant verhält, sondern während der Bestrahlung sowohl die Form einer Gaußkurve als auch ein Plateau aufweist [PR97B]. Ein gaußförmiges Profil kommt zustande, wenn die Neutronen zwischen Lithiumtarget und TFBC gestreut werden. Dann gehorchen sie jedoch nicht mehr der Flußschwächung nach dem Abstandsgesetz, das nur für ungestreute Neutronen gilt, die das Plateau bilden. Das in der Blue Hall gemessene Strahlprofil gibt somit die individuellen Bedingungen wieder, unter denen die Neutronen die Kollimatoren passiert haben.

Zusätzlich dazu hängt die Form der Strahlprofile auch von der Strahlfokussierung ab, die während einer Bestrahlung zum Beispiel durch Beamtunen bis zu etwa 30 % geändert werden kann - nach oben abgeschätzt [ZI98]. Die Streuprozesse an den Neutronen verlagern die Quelle der Neutronen effektiv weiter hinter das Lithiumtarget. So wird mit einer Verschiebung der Quelle um 32 cm hinter das Target das gemessene Verhältnis durch  $(849 \text{ cm}/135 \text{ cm})^2 = 39.6$  erklärt.

Betrachtet man das Verhältnis als Funktion der Schwellenenergie der Reaktion, so erlaubt eine Analyse des Verlaufes erste Aussagen darüber, inwieweit sich die relative spektrale Flußdichte der hinteren Position in der Blue Hall von der an der vorderen Position in der Marble Hall unterscheidet. Das Verhältnis wird als konstant angenommen, da ein Fit einer Geraden eine schlechte Korrelation von nur 0.6 aufweist.

Zu den höher liegenden Verhältnissen der Produkte  $^{52}\text{Fe}$  aus Eisen sowie  $^{61}\text{Cu}$  und  $^{65}\text{Ni}$  aus Kupfer ist zu sagen, daß sie nur Anhaltspunkte sind. Denn die Aktivitäten der in Stockholm vorgenommenen Messungen konnten infolge nicht zur Verfügung stehender totaler Efficiencies nicht für echte Koinzidenzen korrigiert werden. Dies betrifft die kurzlebigen Nuklide der Targets von Position #1 und bewirkt für die genannten Nuklide in Abbildung 5.6 ein erhöhtes Verhältnis  $A(\#2)/A(\#1)$ .

Die Verhältnisse der Reaktionen  $^{nat}\text{Fe}(n,5pxn)^{44m}\text{Sc}$  sowie  $^{nat}\text{Cu}(n,4pxn)^{54}\text{Mn}$  liegen zwar signifikant unterhalb des Mittelwertes, doch zeigen die hohen Unsicherheiten der Daten die Schwierigkeit, diese Nuklide zu messen. Aus den zwei abweichenden Punkten sollte die sich andeutende abfallende Tendenz mit zunehmender Schwellenenergie nicht überinterpretiert werden.

Ein konstantes Verhältnis für die Gesamtheit der Aktivitäten dieser Reaktionen, deren  $E_s$  zwischen -1.74 MeV und 44.6 MeV liegen, wird am einfachsten dadurch erklärt, daß sich die relativen spektralen Flußdichten für beide Positionen nicht unterscheiden. Dabei stellt sich jedoch die Frage, inwieweit die verwendeten Targetelemente überhaupt sensitiv auf Änderungen in der relativen spektralen Flußdichte sind. Deren Ursache sind zum einen der Transport zwischen den beiden Bestrahlungspositionen durch die Kollimatoranlage und zum anderen die unterschiedlichen räumlichen Gegebenheiten. Wie erwähnt ist die im Vergleich zur Blue Hall kleine Marble Hall voll ausgestattet mit dem Zubehör zur Strahlführung und bietet so viel mehr Angriffspunkte zur Streuung der Neutronen und zur Produktion niederenergetischer sekundärer Neutronen, die im folgenden als Raumuntergrundneutronen bezeichnet werden. Für diese ist auch der Beamdump eine potentielle Quelle.

Da die Streuquerschnitte für Neutronen zu niedrigen Energien zunehmen und dort am größten sind, sollte das Passieren des Kollimators für den niederenergetischen Teil der spektralen Flußdichte  $\varphi_E$  die

größten Auswirkungen haben. Um mögliche Änderungen von  $\varphi_E$  mit Aktivierungsprodukten zu detektieren, sind daher nur (n,p)-Produkte geeignet, die aus Isotopen mit hohem Gehalt im natürlichen Isotopengemisch produziert werden ( $^{56}\text{Mn}$  aus Fe,  $^{59}\text{Fe}$  aus Co,  $^{58}\text{Co}$  aus Ni). Denn diese weisen oberhalb der Schwelle für Energien von wenigen MeV in der Regel bereits Wirkungsquerschnitte von einigen 100 mb auf und sind so besonders sensitiv für niederenergetische Neutronen. Da für diese Reaktionen jedoch keine Verhältnisse bestimmt wurden, kann keine Aussage über eine Änderung von  $\varphi_E$  für die niedrigen Energien getroffen werden.

Einen ersten Zugang zu Aussagen über das Neutronenfeld außerhalb des  $0^\circ$  Strahles der Neutronen in der Marble Hall und somit auch über die Raumuntergrundneutronen bieten die aktivierten Hintergrundmonitore B1 und B2 aus Kupfer sowie der Stack an Position #3 (Tabelle 4.4). Die Verhältnisse der in ihnen gemessenen spezifischen Aktivitäten zu denen des Stacks #2 sind in Abbildung 5.7 gezeigt.

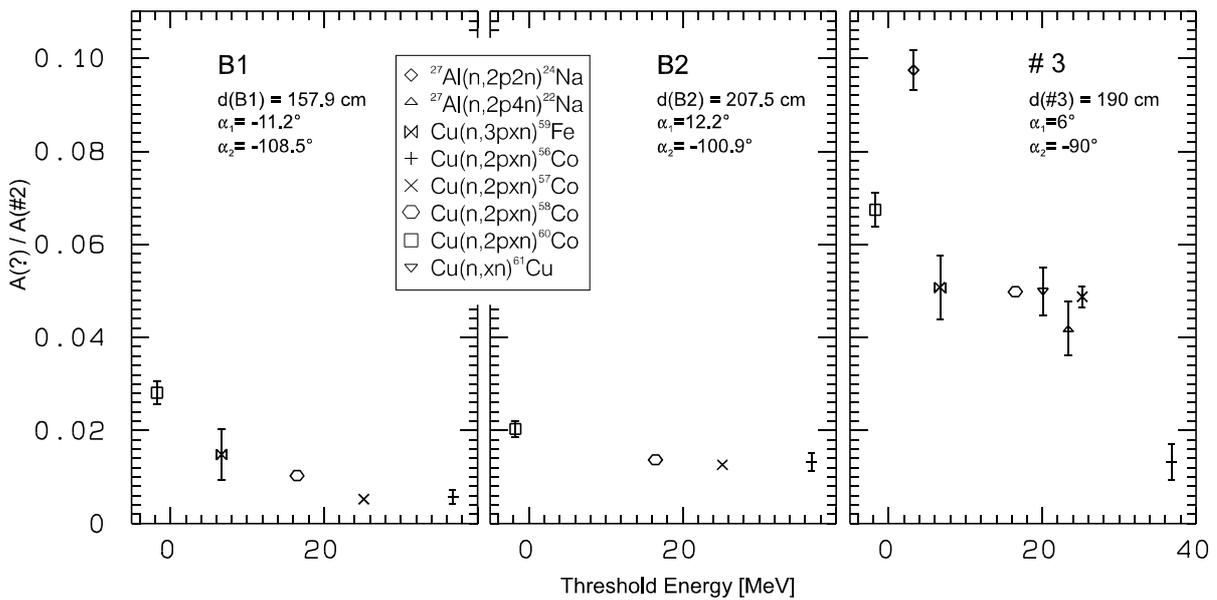


Abbildung 5.7 Verhältnisse der spezifischen Aktivitäten der Hintergrundmonitore B1, B2 und des Stacks an Position #3 zu denen des Stapels am Ort #2 über der Schwellenenergie der Reaktionen. Sei der Fußboden der Halle die x-y-Ebene eines kartesischen Rechtssystems und sei die positive x-Achse die  $0^\circ$ -Achse des Neutronenstrahles mit Ursprung im Lithiumtarget. Dann gibt ausgehend vom Lithiumtarget  $\alpha_1$  den Winkel zur x-Achse in der x-y-Ebene und  $\alpha_2$  den Winkel zur z-Achse an. d ist der Abstand der Folien vom Lithiumtarget.

Die Hintergrundmonitore B1 und B2 zeigen etwa um einen Faktor 50 niedrigere Aktivitäten, die Folien des Stacks #3 etwa um einen Faktor 20 kleinere. Diese Abnahme der Aktivierung ist nicht allein damit zu erklären, daß sich das Neutronenspektrum verändert, weicht man von der  $0^\circ$ -Achse ab [UW97]. Denn der Wirkungsquerschnitt zur Produktion der Peakneutronen nimmt bei Abweichungen bis  $20^\circ$  von der  $0^\circ$ -Achse - für Einschußenergien zwischen 20 und 45 MeV - nur um den Faktor drei ab [UW97].

Die drastische Abnahme in der Aktivierung für die untersuchten Folien ist vielmehr dadurch verständlich, daß die Neutronen nur bis Stack #2 ohne Hindernis propagieren konnten - sieht man von deren Durchtritt durch das das Strahlvakuum begrenzende Diaphragma etwa einen halben Meter vor Stack #2 ab. Die direkte Verbindungsstrecke für alle anderen Monitore führt zum einen zunächst durch das Strahlrohr selbst und durch den ersten die Protonen ablenkenden Magneten (Abbildung 4.1). Diese Hindernisse bewirken eine effektive Abschattung der Monitore, die jedoch - geht man wie im Falle des Stacks #3 näher zur  $0^\circ$ -Achse - deutlich von der Position der Targets abhängt.

Die Tatsache, daß Produkte mit  $E_S$  oberhalb von 30 MeV erzeugt werden ( $^{56}\text{Co}$  aus Cu), weist darauf hin, daß zur Produktion der Restkerne in den Monitoren Neutronen aus dem Lithiumtarget beteiligt sind. Denn ein Raumuntergrund mit derart hohen Neutronenenergien ist unwahrscheinlich. Dies zeigt das Problem auf, daß die Aktivierungsprodukte sowohl durch Quellneutronen aus dem Lithiumtarget als

auch durch Raumuntergrundneutronen erzeugt werden können. Zudem werden die Anteile beider Beiträge im allgemeinen vom Ort in der Halle abhängen.

Trotzdem haben die Aktivitäten aller Monitore die Tendenz, daß die Reaktionen mit niedrigerer Schwellenenergie ein größeres Responseintegral haben. Dies deutet auf das Vorhandensein eines Raumuntergrundes an niederenergetischen Neutronen hin. Bemerkenswert ist das hohe Responseintegral für das Produkt  $^{24}\text{Na}$  aus Al. Die Wirkungsquerschnitte für diese Reaktion haben bei etwa 12 MeV ein Maximum mit immerhin 120 mb [UW88] und das hohe Verhältnis  $A(\#3)/A(\#2)$  von  $^{24}\text{Na}$  weist somit auf Anteile niederenergetischer Raumuntergrundneutronen hin. Dies würde auch das hohe Verhältnis  $A(\#2)/A(\#1)$  für  $^{24}\text{Na}$  in Abbildung 5.6 erklären.

Zur konkreten Trennung der Raumuntergrundneutronen von den Neutronen aus dem Lithiumtarget für das jeweilige Experiment müßten Monte-Carlo-Rechnungen unter Berücksichtigung der Raumgeometrie durchgeführt werden. Solche Simulationen zeigen beispielsweise für die Bestrahlungseinrichtung am CYRIC [TA96], daß eine Neutronenkomponente durch Raumstreuung unterhalb von 1 MeV existiert.

Eine solche Berechnung wurde in dieser Arbeit nicht durchgeführt. Die Ergebnisse aus Abbildung 5.7 zeigen jedoch, daß infolge des konstanten Verhältnisses  $A(\#3)/A(\#2)$  kein Beitrag der Raumuntergrundneutronen für Reaktionen mit  $E_s$  oberhalb von 10 MeV nachgewiesen wird - der Großteil der Reaktionen. Für  $^{60}\text{Co}$  aus Kupfer werden die Beiträge der Raumuntergrundneutronen am Responseintegral an der Position #2 auf 2 %, für  $^{24}\text{Na}$  aus Al auf 5 % abgeschätzt.

Dies folgt unter der Annahme, daß der durch die Raumuntergrundneutronen produzierte Anteil an der Aktivität an Position #2 und #3 gleich ist. Außerdem wurde vereinfacht angenommen, daß an Position #3 die Produkte mit  $E_s > 10$  MeV ausschließlich durch die primären Neutronen produziert werden und daß die primären Neutronen auch für die Reaktionen mit niedrigen  $E_s \leq 10$  MeV das gleiche Verhältnis  $A(\#3)/A(\#2)$  bewirken wie für die anderen Reaktionen (mit der Ausnahme von  $^{56}\text{Co}$  aus Kupfer). Als wichtiges Ergebnis ist somit festzuhalten, daß die Raumuntergrundneutronen nur für Reaktionen mit niedrigen  $E_s \leq 10$  MeV einen Beitrag zur Produktion haben, daß sie für den überwiegenden Teil der Produkte jedoch nicht von Bedeutung sind.

Diese Tatsache wirkt wiederum zurück auf die oben angesprochene Methode, mit Hilfe der Verhältnisse  $A(\#2)/A(\#1)$  von (n,p)-Produkten Aussagen über die Änderung der niederenergetischen relativen spektralen Flußdichte zwischen diesen beiden Positionen zu treffen. Dadurch daß die Aktivitäten der (n,p)-Produkte auch Anteile durch die Raumuntergrundneutronen enthalten, wird es nicht möglich sein, mit ihnen auf eine Änderung von  $\varphi_E$  zu schließen. Denn ein Abzug der Anteile der Raumuntergrundneutronen an den gemessenen (n,p)-Responseintegralen mit Hilfe der oben gezeigten Methode oder aber mit Monte-Carlo-Rechnungen ist mit Unsicherheiten verbunden. Diese wirken sich auf  $A(\#2)/A(\#1)$  aus und erschweren eine genaue Bestimmung dieser Verhältnisse. Eine Aussage, inwieweit sich  $\varphi_E$  von Position #2 zu Position #1 für die niedrigen Energien ändert, ist daher nur mit Monte-Carlo-Simulationen möglich.

Des weiteren muß für die Responseintegrale, die in die Entfaltung eingehen, der Anteil der Raumuntergrundneutronen bei den Unsicherheiten der Aktivitäten der niederenergetischen Produkte derart berücksichtigt werden, daß die Unsicherheit nach unten vergrößert wird. Aus den obigen Abschätzungen sollte diese Vergrößerung konservativ betrachtet je nach Reaktion bei etwa 5 % bis 20 % liegen. Eine genaue Abschätzung der Raumuntergrundneutronen für *alle* Experimente ist nicht möglich, da diese im allgemeinen von Experiment zu Experiment variieren werden - abhängig etwa von der Protonenenergie und der Dumpefficiency der Protonen für den Beamdumpe.

Zusätzlich ist ein Untergrund an niederenergetischen Neutronen mit Energien kleiner als  $\sim 1$  MeV eindeutig über die durch die Reaktionen  $^{65}\text{Cu}(n,2n)^{64}\text{Cu}$  und  $^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$  ( $\sigma_{(n,\gamma)\text{thermisch}} = 4.5$  b [PF95]) induzierte  $^{64}\text{Cu}$ -Aktivität der Kupferhintergrundmonitore nachgewiesen. Diese weisen ein Verhältnis zu der Aktivität in Stack #2 zwischen 0.51 und 0.74 auf, das sich deutlich von den anderen in Abbildung 5.7 gezeigten nach oben abhebt und das so den Einfluß des durch die niederenergetischen Neutronen induzierten (n, $\gamma$ )-Reaktionskanals zeigt. Auch das Verhältnis  $A(\#2)/A(\#1)$  der  $^{64}\text{Cu}$ -Aktivitäten von  $198 \pm 7$  ist ein Indikator für einen deutlich höheren Untergrund solcher niederenergetischer Neutronen in der Marble Hall im Vergleich zur Blue Hall.

Nimmt man an, daß  $^{59}\text{Fe}$  aus Eisen des Stacks #2 mit  $\sigma_{(n,\gamma)\text{thermisch}}=1.28\text{ b}$  [PF95] nur über thermische Neutronen erzeugt wird, so bekommt man eine Flußdichte der thermischen Neutronen von  $4.8 \cdot 10^5\text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  am Ort von Stack #2. Der damit berechnete Anteil der  $(n,2n)$ -Reaktion zum  $^{64}\text{Cu}$  ergibt dann ein korrigiertes Verhältnis von  $A(\#2)_{(n,2n)}/A(\#1)=31.2\pm 3.2$ , das um etwa 30 % von denen der anderen Reaktionen (Abbildung 5.6) abweicht. Hinsichtlich der einfachen Annahme, daß ausschließlich thermische Neutronen einen zusätzlichen Beitrag geben, ist das korrigierte Verhältnis jedoch zunächst in erster Näherung als befriedigend zu betrachten und die thermische Flußdichte als erste grobe Schätzung für einen Untergrund dieser Art anzunehmen.

## 5.2.2 Die Flußdichte der Neutronen in der Marble Hall

Wie im vorangegangenen Kapitel 5.2.1 herausgestellt wurde, ist eine entscheidende Anforderung an eine Bestrahlungseinrichtung für Aktivierungsexperimente eine genügend hohe Flußdichte zur Erzeugung einer großen Bandbreite von Restkernen. Wie verhält sich nun die Flußdichte am Ort der Bestrahlungskammer in der Marble Hall im Vergleich zu den Flußdichten, die an anderen Bestrahlungseinrichtungen genutzt werden?

Für einen solchen Vergleich sind zunächst in Tabelle 5.2 die Peakflußdichten für die Position in der Marble Hall angegeben, die durch die Anwendung der TFBC-Technik in Zusammenarbeit mit Mitarbeitern des Khlopin Radium Institutes, St. Petersburg, Rußland, gemessen wurden. Als erster Wert ist der Meßwert  $\varphi_{\text{meß}}$  zusammen mit dem Abstand der Meßposition hinter dem Lithiumtarget  $D_{\text{meß}}$  und der verwendeten Protonenenergie  $E_p$  angegeben. Der Meßwert  $\varphi_{\text{meß}}$  wurde auf die nominelle Dicke des Lithiumtargets und den vom Beschleunigerpersonal mit einer Unsicherheit von etwa 10 % gemessenen Protonenstrom normiert und ist damit nicht als exakter Meßwert anzusehen.

Da  $D_{\text{meß}}$  für die Resultate nicht einheitlich ist, wurde die Flußdichte  $\varphi_{\text{meß}}$  zum Vergleich unter ausschließlicher Verwendung des Abstandsquadratgesetzes auf  $\varphi_{\text{ref}}$  an einer Referenzposition mit dem Abstand  $D_{\text{ref}}=1.74\text{ m}$  umgerechnet. Diese Referenzposition gibt den Beginn des Stacks für das Experiment UPPN01 an (Kapitel 4.2.2.2).

Tabelle 5.2 Flußdichtedaten für die während dieser Arbeit durchgeführten Experimente und benutzten Bestrahlungsorte. Angegeben sind die mittleren Flußdichten mit dem zugehörigen Abstand  $D_{\text{meß}}$  hinter dem Lithiumtarget und der Protonenenergie  $E_p$ , normiert auf die Dicke des Lithiumtargets  $d(\text{Li})$ ; weitere Erklärungen siehe Text.

Meßplatz	Peakflußdichte			Monitormessungen mit	
	$\varphi_{\text{meß}}$	für	$D_{\text{meß}}, E_p$ [m, MeV]		
			$\varphi_{\text{ref}}$ an $D_{\text{ref}}=1.74\text{ m}$		
Blue Hall	0.013		8.38, 100	0.30	TOF mit (n,p)-Spektrometer [CO90] TOF mit TFBC
	0.01 (TEST)		8.73, 76.4	0.26	
Marble Hall, Parasitic- Tyskland-Project (PARTY-Project)	0.41 (TEST)		1.59, 76.4	0.34	TOF mit TFBC und Aktivierung TFBC TFBC TFBC
	0.64 (UPPN01)		1.50, 78.1	0.48	
	0.46 (UPPN0C)		1.92, 98.5	0.56	
	0.40 (UPPN0D)		1.92, 98.5	0.49	

Zu dieser Umrechnungsmethode sind die folgenden zwei Anmerkungen zu machen. Nicht berücksichtigt wird dabei die Absorption der Neutronen in Luft, die jedoch nur etwa ein halbes Prozent pro Meter in trockener Luft beträgt [SC98B]. Außerdem ist zu beachten, ob die Neutronen ein freies oder ein kollimiertes Neutronenfeld bilden. Ist letzteres der Fall, so kann eine nicht unerhebliche Abweichung der wahren Flußdichte von der mit dem Abstandsquadratgesetz berechneten auftreten, deren Quantifizierung *a priori* nicht erfolgen kann. Auf dieses Problem wurde bereits in Kapitel 5.2.1.1 hingewiesen.

Für die in Tabelle 5.2 eingetragenen Werte ergeben sich daher die folgenden Konsequenzen. Die Absorption erhöht die Flußdichten der Blue Hall, rechnet man sie auf die Referenzposition um, um etwa 3.5 %, die Daten der Marble Hall ändern sich vernachlässigbar um weniger als 0.2 %. Die Kollimierung wirkt sich deutlich bei der Umrechnung von Werten der Blue Hall aus, was sich in dem um 35 % unterschiedlichen Wert des TEST-Experimentes (Kapitel 5.2.1.1) zeigt. Da in der Marble Hall selbst jedoch von der Gültigkeit des Abstandsquadratgesetzes ausgegangen werden kann, ergibt sich eine Peakflußdichte von etwa  $0.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ mmLi}^{-1} \mu\text{A}^{-1}$  an der Referenzposition. Dieser Wert ist ein wichtiges Ergebnis zur Charakterisierung der Bestrahlungskammer.

Zum Vergleich mit anderen Bestrahlungseinrichtungen sind in Tabelle 5.3 die Kenndaten von Instituten eingetragen, an denen mit quasimonoenergetischen Neutronen experimentiert wird. Die Zusammenstellung gibt ohne Anspruch auf Vollständigkeit typische, in Veröffentlichungen erwähnte Parameter an.

Es wird deutlich, daß die Verwendung von  ${}^7\text{Li}$  als Target die gängigste Methode zur Erzeugung quasimonoenergetischer Neutronen ist, da - gegenüber dem auch verwendeten Target  ${}^9\text{B}$  - relativ zum niederenergetischen Tail mehr Neutronen im Peak produziert werden [BA69, JU71]. Für den angegebenen Wert an der Referenzposition gilt dasselbe schon oben gesagte, so daß dieser nur als Schätzwert anzusehen ist, da es sich (mit Ausnahme des INS) um kollimierte Neutronenfelder handelt. Da die Flußdichten an der Referenzposition alle kleiner als die Werte in der Marble Hall nach Tabelle 5.2 sind, könnte dies mit einer Verlagerung der Quelle hinter das reale Target durch Streuprozesse beim Transport erklärt werden.

Im Vergleich hebt sich die Position der Aktivierungskammer am TSL durch ihre Lage direkt hinter dem Lithiumtarget und der damit entsprechend höheren genutzten Flußdichte von den Parametern der übrigen Institute deutlich ab. Denn die Aktivierung an allen anderen Einrichtungen (mit Ausnahme des INS) erfolgt mit dem wohldefinierten Neutronenstrahl, nachdem er das Kollimatorsystem passiert hat. Daher erfolgt die Aktivierung etwa mindestens vier Meter hinter dem Lithiumtarget, wodurch wiederum die Flußdichte zur Aktivierung drastisch abnimmt. Solche Positionen sind zur Durchführung von Aktivierungsexperimenten nur bedingt geeignet. Nur die Aktivierung am INS erfolgt mit 20 cm Abstand ebenfalls direkt hinter dem Lithiumtarget; und dies auch nur, weil am CYRIC die Flußdichte zur Aktivierung zu niedrig ist.

Die Möglichkeit der direkten Messung der Flußdichte in einer solchen, dem Lithiumtarget nahen Position, zeigen die erfolgreich durchgeführten Messungen mit den TFBCs direkt im Shuttle für die Bestrahlungen UPPNOC bis -0E (Kapitel 5.2.4). Diese Möglichkeit des Monitorings der Peakflußdichte am Ort der Aktivierung unterstreicht die Einzigartigkeit der Bestrahlungseinrichtung in der Marble Hall des TSL, die die bisher einzige auf der Welt ist, mit der die hohen Flußdichten direkt hinter dem Lithiumtarget über einen großen Energiebereich genutzt werden.

Dem Vorteil der hohen Flußdichten steht entgegen, daß die spektrale Flußdichte nicht mit den TOF-Methoden am Ort des Stacks gemessen werden kann wie dies an den Positionen hinter dem Kollimator erfolgt. Daher muß besonderes Gewicht auf die genaue Erstellung von  $\varphi_E$  mit anderen Methoden gelegt werden (Kapitel 6.1.3).

Tabelle 5.3 Kenndaten von Einrichtungen, an denen mit quasimonoenergetischen Neutronen experimentiert wird.

Einrichtung	$E_p$ [MeV]	$I_p$ [ $\mu$ A]	d(Target) [mm]		Peakflußdichte $10^5$ [cm <sup>-2</sup> (mm-d(Li) s $\mu$ A) <sup>-1</sup> ]			Monitormessungen mit
					$\varphi_{\text{mess}}$ an	$D_{\text{mess}}$ $E_p$ [m, MeV]	$\varphi_{\text{ref}}$ an $D_{\text{ref}} = 1.74$ m	
Cyclotron and Radioisotope Center (CYRIC), Tohoku University, Japan [IR97]	20-40	bis 1	2	<sup>nat</sup> Li	0.006 0.009	8.6, 25 8.6, 35	0.15 0.22	PRTC, <sup>238</sup> U FC, Aktivierung Li-Target, TOF mit LC & <sup>238</sup> U FC
Institute for Nuclear Study (INS), University of Tokyo, Japan [SH95B]	20-40	2	2	99.98 % <sup>7</sup> Li	19.1 35.4	0.15, 20 0.15, 40	0.14 0.26	Nicht genug Platz für TOF; Messung des Neutronenfeldes am CYRIC
				1-2	<sup>9</sup> Be	55.6 93.5	0.2, 22.5 0.2, 40	
Takasaki Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute (TIARA), Japan [IR97]	40-90	bis 3-5	3.6 - 6.6	99.9 % <sup>7</sup> Li	(0.17 - 0.4)/d(Li)	(0.89-2.11)/d(Li)		PRTC, <sup>238</sup> U, <sup>232</sup> Th FC TOF mit LC
Institute of Physical and Chemical Research (RIKEN), Japan [IR97]	70-210	bis 0.1	10	99.8 % <sup>7</sup> Li	0.013	8.37, 70-210	0.30	Aktivierung Li-Target TOF mit BC501A LC
Université Catholique de Louvain (UCL), Louvain-la-Neuve, Belgium [SC97]	25-70	bis 10	3-10	<sup>nat</sup> Li	0.0043	11, 36.4-62.8	0.17	PRTC TOF mit <sup>238</sup> U FC & NE213
Paul-Scherrer-Institut (PSI), Villigen, Schweiz [SC92B]	30-70	-	2	<sup>9</sup> Be	0.052	7.78, 71.3	1.04	PRTC TOF mit NE213 & <sup>238</sup> U FC
Crocker Nuclear Laboratory, University of California, Davis, USA [JU70, JU71]	bis 65	7	1.8 0.5	<sup>7</sup> Li <sup>9</sup> Be	-	-	-	PRTC TOF
TRIUMF, Vancouver, Canada [HE87]	180-520	-		<sup>7</sup> Li	-	-	-	TOF mit (n,p)-Spektrometer
TSL, Uppsala, Schweden	20-180	bis 10	2-15		siehe Tabelle 5.2		0.5	TFBC

### 5.2.3 Allgemeine Aspekte der Bestrahlung in der Targetkammer

Nach der Installation der Bestrahlungseinrichtung wurden zunächst einige grundlegende Aspekte zur Bestrahlung des Stacks in der Targetkammer untersucht. Das betrifft insbesondere die Fragen, inwieweit die Bestrahlung über den Querschnitt der Targets homogen ist und wie sich die Absorption der Neutronen im Stack verhält. Der erste Punkt - wie schon in Kapitel 4.5.2.3 erwähnt - ist von Interesse, um das Ansprechvermögen des Halbleiterdetektors für die Bestrahlungsprobe hinreichend genau zu bestimmen. Beide Fragestellungen haben jedoch gemeinsam, die räumliche Variation der Flußdichte der Neutronen über den Stackdimensionen zu beschreiben. Denn da in die Berechnung der Wirkungsquerschnitte nach Kapitel 3.2 die spektrale Flußdichte direkt eingeht, ist eine genaue Kenntnis der Variationen dieser über den Stackverlauf unumgänglich. Ein ebenso wichtiger Gesichtspunkt ist die in Kapitel 5.2.3.3 behandelte Frage, inwieweit Protonen zur Produktion der Restkerne in den Stacks beitragen.

#### 5.2.3.1 Abhängigkeit der Aktivierung vom Targetquerschnitt

Zur Untersuchung der Homogenität der Aktivierung über den Targetquerschnitt wurde das Experiment UPPNPE (Tabelle 4.5) durchgeführt. In diesem wurden in einer vorderen, einer mittleren und einer hinteren Position in der in Abbildung 5.8 gezeigten Art und Weise vorher zerschnittene Polyethylen-scheiben bestrahlt. Da das Shuttle jedoch bei der Beförderung im Tubesystem zur Position in der Marble Hall rotiert, ist die während der Bestrahlung eingenommene Rechts-Links-Orientierung der Targets in der Kammer nach der Entnahme aus dem Shuttle nicht nachzuvollziehen.

Die Aktivitäten des Nuklids  $^{11}\text{C}$  wurden nach der Bestrahlung in jedem einzelnen Teil  $\gamma$ -spektrometrisch bestimmt. Abbildung 5.8 zeigt die auf ein willkürlich herausgegriffenes Teil normierten spezifischen Aktivitäten. Da die Unsicherheiten der Aktivitäten untereinander etwa 4 % betragen, wird aus diesen Aktivierungsergebnissen auf eine Homogenität der Flußdichte über den Querschnitt geschlossen.

Eine weitere Möglichkeit die Homogenität der Bestrahlung zu prüfen, besteht darin, die Targets der Experimente UPPNOC bis -OE heranzuziehen. Die Bestrahlung UPPNOE konnte in dieser Arbeit nicht mehr ausgewertet werden, im folgenden werden daher nur die Ergebnisse der Experimente UPPNOC und -OD betrachtet. Wie Abbildung 4.3 zeigt, waren die direkt neben den TFBC positionierten Kupfertargets der Experimente UPPNOC/OD aus einer Kreisscheibe und einem zugehörigen Ring zusammengesetzt.

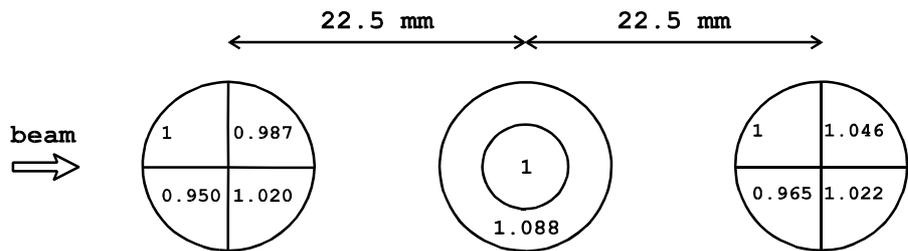


Abbildung 5.8 Anordnung der im Experiment UPPNPE bestrahlten Polyethylenfolien. Die Zahlenwerte für die einzelnen Stücke geben die auf ein willkürlich ausgewähltes Teil normierten spezifischen Aktivitäten an.

Tabelle 5.4 Aktivitäten der vorderen Kupfertargets der Experimente UPPNOC/OD. Angegeben sind die auf das 19 mm-Durchmesser Target normierten spezifischen Aktivitäten. Die angegebenen Unsicherheiten sind die relativen zum Vergleich beider Werte eines Targets.

Produkt	UPPNOC		UPPNOD	
	Durchmesser 19 mm	Durchmesser 17 mm	Durchmesser 19 mm	Durchmesser 17 mm
$^{56}\text{Mn}$	$1 \pm 0.119$	$0.960 \pm 0.132$	$1 \pm 0.061$	$1.012 \pm 0.090$
$^{61}\text{Cu}$	$1 \pm 0.051$	$1.047 \pm 0.075$	$1 \pm 0.046$	$1.081 \pm 0.046$

Für die Kreisscheibe und das Gesamttarget gibt Tabelle 5.4 die Aktivitäten der kurzlebigen Nuklide hinter dem vorderen TFBC an. Eine getrennte Messung der Kreisscheibe des Durchmessers von 10 mm auch der hinteren Targets erwies sich infolge der geringen Aktivität dieser Targets als sinnlos. Auch die Ergebnisse in Tabelle 5.4 zeigen keine Inhomogenität in der Bestrahlung. Denselben Schluß liefern die Betrachtungen der Flußdichten der TFBC-Monitore mit 11 und 17 mm Durchmesser dieser Bestrahlungen sowie die Auswertungen von Festkörperkernspurdetektoren, die ebenfalls für diese Experimente im Stack positioniert waren [PR98].

Diese sich aus allen beschriebenen Experimenten ergebende Homogenität der Flußdichte über den Targetquerschnitt ist zu erklären mit der Tatsache, daß die Targets maximal unter einem Winkel von  $1.55^\circ$  vom Lithiumtarget aus gesehen bestrahlt wurden (Abbildung 4.2) und die Neutronen vom Lithiumtarget bis zum Stack propagieren, ohne auf ein Hindernis zu treffen. Prinzipiell zeigen Messungen, daß sich die Spektren der emittierten Neutronen mit dem Winkel verändern [SC77, UW97]; für die in dieser Arbeit relevante geringe Variation des Winkels im Bereich  $< 1.55^\circ$  sind die Änderungen jedoch derart, daß sie mit den hier vorgestellten Methoden nicht gemessen werden.

### 5.2.3.2 Abhängigkeit der Aktivierung von der Position im Stack

Neben der Abhängigkeit der Aktivierung über den Querschnitt *eines* Targets ist gleichermaßen der Aktivitätsverlauf für eine Reaktion in *mehreren* gleichartigen Folien als Funktion der Position im Stack zu untersuchen. Denn bereits die ersten Experimente UPPNCC und UPPN02 zeigten, daß die induzierte Aktivität einer Reaktion von der Platzierung eines Targets im Stack und somit von der vor dem Target bestrahlten Massenbelegung abhängt. Nach Gleichung (3.23) und (3.25) ist die Ursache hierfür eine Änderung der spektralen Flußdichte. Die genaue Kenntnis einer solchen Änderung der spektralen Flußdichte über den Stackverlauf ist unerlässlich und soll im folgenden ausführlich behandelt werden, da die spektrale Flußdichte direkt in die Bestimmung der Anregungsfunktionen nach der Methode des Least-Squares-Adjustment eingeht.

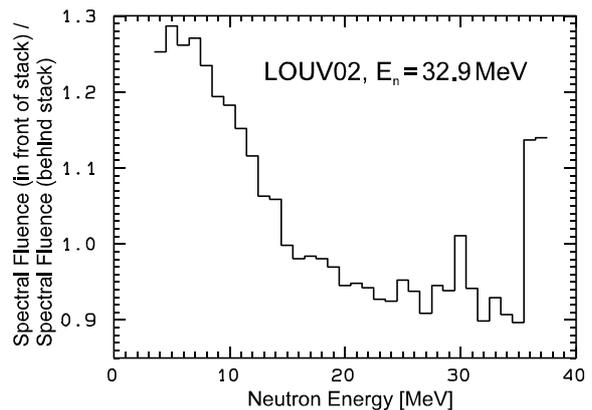


Abbildung 5.9 Verhältnis der spektralen Fluenzen mit und ohne den Stackdurchgang für das Experiment LOUV02. Eingezeichnet sind die Messungen von  $\varphi_E$  mit dem NE213, die auf  $\varphi(E_n > 3 \text{ MeV}) = 1 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  normiert sind.

#### 5.2.3.2.1 Änderung der spektralen Flußdichte bei Stackdurchgang

Die spektrale Flußdichte wurde für das Experiment LOUV02 vor und nach dem Stack gemessen (Kapitel 4.2.3). Das Verhältnis beider spektraler Fluenzen zeigt Abbildung 5.9. Man erkennt, daß mit abnehmender Energie unterhalb des Peaks (siehe Tabelle 4.7:  $E_2 = 29 \text{ MeV}$ ,  $E_n = 32.9 \text{ MeV}$ ) nach dem Stackdurchgang zunehmend weniger Neutronen in den niederenergetischen Energiegruppen vorhanden sind als vorher.

Diese ab etwa 20 MeV deutlich erkennbare Abnahme ist durch den größeren totalen Wirkungsquerschnitt mit abnehmender Neutronenenergie und somit durch die stärkere Entfernung der Neutronen aus dem Strahl - sei es durch Kernreaktionen, sei es durch elastische und unelastische Streuprozesse - zu er-

Tabelle 5.5 Verhältnis der Responseintegrale  $R_{\text{mit}}/R_{\text{ohne}}$  berechnet mit der spektralen Flußdichte des Experimentes LOUV02 mit und ohne Stackdurchgang. Für die jeweilige Reaktion ist die untere Integrationsgrenze  $E_u$  angegeben.

Reaktion	$E_u$ [MeV]	$R_{\text{mit}}/R_{\text{ohne}}$
$^{nat}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$	3.50	0.842
$^{nat}\text{Fe}(p,xn)^{57}\text{Co}$	3.50	0.877
$^{nat}\text{Fe}(p,2pxn)^{54}\text{Mn}$	9.88	0.998
$^{nat}\text{Ni}(p,pxn)^{57}\text{Ni}$	14.0	0.995
$^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$	22.0	0.986

klären. Zusätzlich zu dieser Tendenz treten in Abbildung 5.9 zwei Peaks bei etwa 30 und 38 MeV auf, die sich durch die dort vorhandene aufsteigende und absteigende Flanke des Hochenergiepeaks und so durch geringe gegenseitige Energieverschiebungen dieser ergeben.

Die Änderung der relativen spektralen Flußdichte durch den Stackdurchgang hat nach Gleichung (3.23) Einfluß auf das Responseintegral einer Reaktion. Tabelle 5.5 zeigt dazu theoretisch, welche Verhältnisse der Responseintegrale sich ergeben, wenn man mit den beiden gemessenen spektralen Flußdichten aktiviert. Bei der Berechnung dieser nach Gleichung (3.23) wurden zur besseren Vergleichbarkeit die spektralen Flußdichten auf den Peak normiert. Sie wurden mit Anregungsfunktionen Protonen-induzierter Reaktionen gefaltet, für die sich der Hauptanteil der Produktion entsprechend der unterschiedlichen Schwellenenergien und Verläufe der Anregungsfunktionen in verschiedenen Energiebereichen ergibt.

Die Ergebnisse dieser Rechnung zeigen, daß nur das Verhältnis für die beiden Reaktionen mit den unteren Integrationsgrenzen  $E_u$  bei 3.5 MeV signifikant von eins abweicht, da sich durch die geringere Intensität im Niederenergetischen für die spektrale Flußdichte nach Stackdurchgang ein geringeres Responseintegral ergibt. Die Größe des Verhältnisses variiert dabei bei gleichem  $E_u$  um etwa 4 %. Für alle anderen Reaktionen weichen die Verhältnisse um maximal etwa 1 % von eins ab. Die unterschiedlichen relativen spektralen Flußdichten bewirken also nur für Reaktionen eine Änderung im Responseintegral, für die die Produktion maßgeblich in dem Energiebereich erfolgt, in dem auch die relativen spektralen Flußdichten voneinander abweichen; für das Experiment LOUV02 ist dies unterhalb von etwa 20 MeV der Fall.

Neben der Änderung der relativen spektralen Flußdichte beim Stackdurchgang schließt man aus den Aktivierungsergebnissen auch auf eine Abnahme des Integrals der spektralen Flußdichte, der Flußdichte selbst. Dies ergibt sich aus dem Verlauf der Aktivierung einer Reaktion in Abhängigkeit der Positionierung der Folien im Stack. Als Beispiel dazu ist im rechten Teil von Abbildung 5.10 die Verminderung des Responseintegrals für die Reaktion  $^{nat}\text{Cu}(n,2pxn)^{58}\text{Co}$  ( $E_s = 16.5$  MeV) gezeigt, wie sie sich für die drei Experimente aus bis zu neun Kupfertargets ergibt. Diese Abnahme wird durch eine Verringerung der Flußdichte erklärt, die durch die Absorption der Neutronen in Kernreaktionen einerseits und durch die Abnahme der Flußdichte vom Lithiumtarget entsprechend dem Abstandsquadratgesetz andererseits zustande kommt (Kapitel

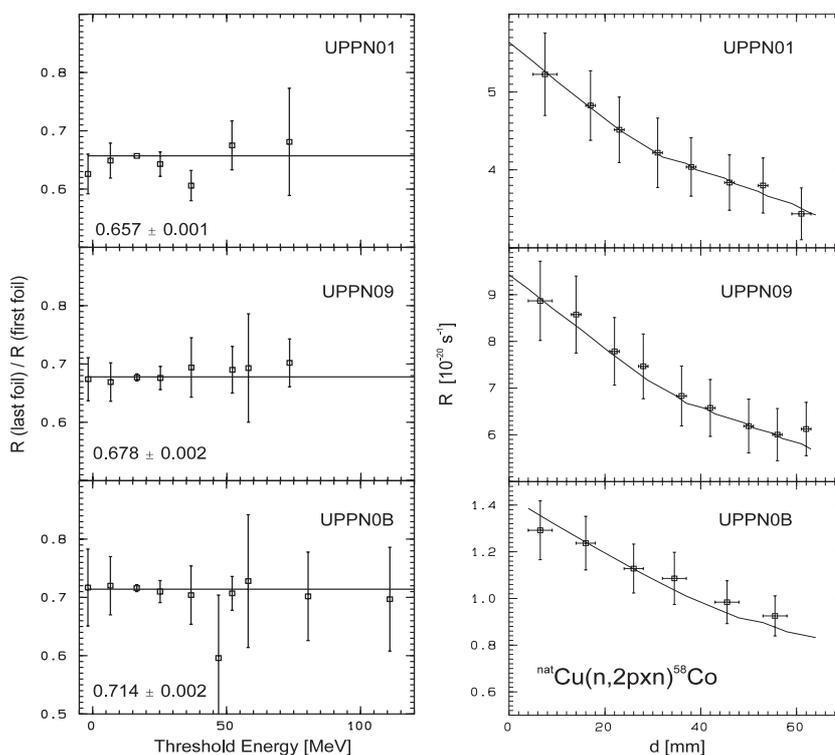


Abbildung 5.10 Links: Verhältnis der Responseintegrale der ersten und letzten (UPPN09: vorletzte) Kupferfolie. Die durchgezogenen Linien und die Zahlenwerte geben den fehlergewichteten Mittelwert an. Für die Berechnung der Schwellenenergie wurde die Emission eines  $\alpha$ -Teilchens berücksichtigt. Rechts: Verlauf des Responseintegrals über der Position  $d$  im Stack für die Reaktion  $^{nat}\text{Cu}(n,2pxn)^{58}\text{Co}$ . Die durchgezogenen Linien zeigen die Absorptionsrechnungen nach  $\exp(-\Sigma_{\text{geo}} \cdot d) / r^2$  mit  $r = 1740 \text{ mm} + d$ .

5.2.3.2.2). Betrachtet man die Aktivitäten der einzelnen Produkt nuklide eines Experimentes, so ergeben sich ähnliche Verläufe wie die der Reaktion  $^{nat}\text{Cu}(n,2pxn)^{58}\text{Co}$  in Abbildung 5.10 (siehe dazu auch Kapitel 6.2.3.4).

Für alle gemessenen Produktnuclide zeigt der linke Teil von Abbildung 5.10 die Verhältnisse der spezifischen Aktivitäten aus der vordersten und der hintersten Folie als Funktion der Schwellenenergien  $E_s$  ihrer Reaktionen. Im Rahmen ihrer Unsicherheiten sind die Verhältnisse für alle Reaktionen eines Experiments konstant. Den Ergebnissen des Experiments LOUV02 folgend wird in erster Näherung davon ausgegangen, daß die Änderung der relativen spektralen Flußdichte das Responseintegral der Nuclide mit  $E_s$  oberhalb von 20 MeV unbeeinflusst läßt - setzt man die Normierung von  $\varphi_E$  auf gleiche Peakflußdichten voraus. Dann geben die Verhältnisse in Abbildung 5.10 (links) die Abnahme der Flußdichte über den Stack an.

Dieser Schluß auf der Basis dieser Annahme muß mit Hilfe von Monte-Carlo-Rechnungen überprüft werden. Denn infolge der im Vergleich zum UCL beim TSL deutlich höheren Einschußenergien der Protonen, kann die Produktion sekundärer Neutronen eine qualitativ andere Änderung der relativen spektralen Flußdichte bewirken. Dies könnte diese Annahme für die Bestrahlungen am TSL ungültig machen. Vorweggenommen sei hier, daß die Ergebnisse der Monte-Carlo-Rechnungen die Entsprechung von Aktivitätsverminderung und Flußdichteabnahme bestätigen (Kapitel 6.2.3.4).

Daß darüber hinaus auch die Produktnuclide mit  $E_s$  unterhalb von 10 MeV -  $^{60}\text{Co}$  und  $^{59}\text{Fe}$  - im Rahmen der Unsicherheiten nicht vom fehlergewichteten Mittelwert abweichen zeigt, daß ihre Produktion im niederenergetischen Bereich keinen signifikanten Anteil zur Gesamtproduktion hat. Dies läßt sich dadurch erklären, daß beides Nuclide mit Neutronenüberschuß sind, die durch niederenergetische Compoundkernreaktionen kaum gebildet werden, da bei diesen gerade bevorzugt die nichtgeladenen Neutronen abgedampft werden.

Da die  $\varphi_E$  nach Kapitel 3.2 bei der Bestimmung der Anregungsfunktion mit Hilfe der Methode des Least-Squares-Adjustment eingeht, hat die festgestellte Änderung von  $\varphi_E$  bei Durchgang durch den Stack weitreichenden Folgen. Denn prinzipiell muß dann für jede Aktivierungsposition im Stack, aus deren dort erzeugten Responseintegralen Anregungsfunktionen extrahiert werden sollen, eine eigene spektrale Flußdichte bestimmt werden. Eine Messung dieser vor jeder Folie ist infolge der aufwendigen Aufbauten dazu nicht möglich. Um die Änderung der spektralen Flußdichte im Stack nachzuvollziehen, greift man daher auf theoretische Methoden zurück. Prinzipiell bedarf es dazu der Modellierung der Trajektorie eines jeden Neutrons, die mit Monte-Carlo-Methoden erfolgt, worauf ausführlich in Kapitel 6 eingegangen wird.

Um wenigstens die Abnahme der Flußdichte über den Stack experimentell zu bestimmen, wird für die Stacks zwischen jeder Elementfolie eine Monitorfolie aus Kupfer plaziert (Kapitel 4.2.1). Kupfer hat den Vorteil, daß sehr viele Produktnuclide mit  $\gamma$ -Spektrometrie meßbar sind. Da die Aktivitäten dieser die Abnahme der Flußdichte anzeigen, steht mit der großen Anzahl verschiedener Nuclide ausreichend Information zur Verfügung, um die Flußdichteverminderung genau zu berechnen.

#### 5.2.3.2.2 Quantifizierung der Abnahme der Flußdichte

Um die Gründe für die Verminderung der Flußdichte bei dem Stackdurchgang zu untersuchen, wurden die Bestrahlungen UPPN07/08 durchgeführt. In beiden Bestrahlungen wurden drei Graphittargets in identischen Positionen vorne, in der Mitte und hinten in der Kammer bestrahlt; unterschiedlich waren lediglich die Absorbermaterialien zwischen diesen Targets. Im Experiment UPPN07 war es Polyethylen, in der Bestrahlung UPPN08 Kupfer. Nach der Bestrahlung wurden die Aktivitäten des Produktes  $^{11}\text{C}$   $\gamma$ -spektrometrisch gemessen; die Ergebnisse hierzu sind in Abbildung 5.11 dargestellt. Entsprechend der unterschiedlichen Absorbermaterialien beträgt die Verringerung der spezifischen Aktivität im Stack mit Polyethylen 18 % von vorne nach hinten, im Kupferstack nimmt sie um 36 % ab.

Zur quantitativen Erklärung dieser Ergebnisse werden im folgenden Absorptionsrechnungen angewendet. Dazu wurde die Absorption der Neutronen aus dem Strahl durch Kernreaktionen, die sogenannte nukleare Absorption, mit einem energieunabhängigen makroskopischen Wirkungsquerschnitt  $\Sigma$  in Verbindung mit der Abnahme der Flußdichte nach dem Abstandsquadratgesetz nach  $\exp(-\Sigma \cdot d)/r^2$  berechnet. Hierbei ist  $d$  die Dicke des passiert Materials im Stack und  $r$  der Abstand vom Lithiumtarget.

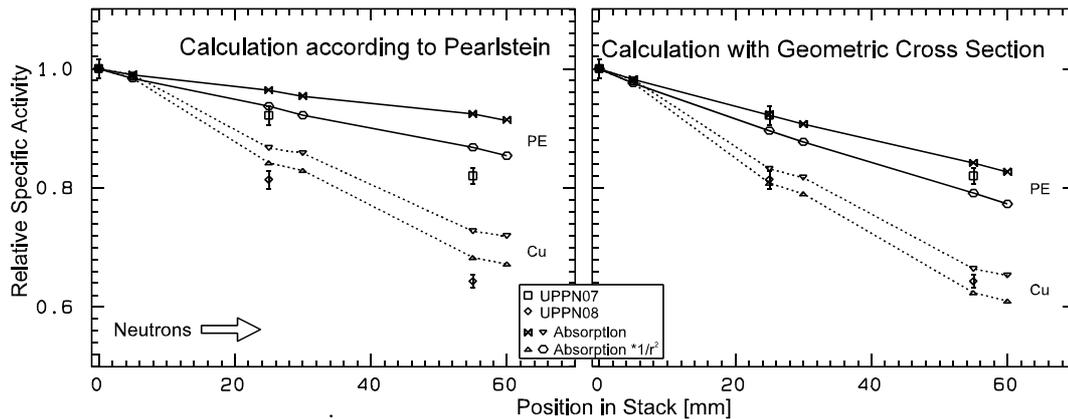


Abbildung 5.11 Experimentelle und theoretische Ergebnisse der Experimente UPPN07/08. Dargestellt sind die auf die vordere Position normierten spezifischen Aktivitäten des Nuklides  $^{11}\text{C}$ . Die Rechnungen sind für die Positionen vor und nach den Graphitfolien angegeben und die Verbindungslinien dazu sind eye-guides.

Zu den Rechnungen ist zu bemerken, daß sie nur ein vereinfachtes Modell darstellen. Denn es liegt ein quasimonoenergetisches Spektrum an Neutronen vor, deren Wirkungsquerschnitt zur nuklearen Absorption von der Energie abhängt. Durch die Benutzung eines energieunabhängigen Absorptionsquerschnittes wird somit die Änderung der spektralen Flußdichte nicht in Betracht gezogen. Auch das Miteinbeziehen des Abstandsgesetzes fußt nur auf beschränkter physikalischer Gültigkeit. Denn für seine Anwendung ist die geradlinige Ausbreitung der Teilchen ohne weitere Wechselwirkung Voraussetzung, was durch den Stack als Hindernis nicht mehr gegeben ist. Trotz ihrer Einfachheit bieten die Rechnungen die Möglichkeit, ohne großen Aufwand den Verlauf der Aktivitäten zu erklären - etwa im Vergleich zu Monte-Carlo-Rechnungen.

Als einfachste Näherung für die Absorption durch die Kernreaktionen wurde zum einen der energieunabhängige geometrische Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{\text{geo}} = r_0 \cdot A^{1/3}$  mit  $r_0 = 1.128 \text{ fm}$  nach [HO57] benutzt. Da er eine Abschätzung nach oben darstellt, wurde in einem zweiten Ansatz der Querschnitt der nuklearen Absorption nach Pearlstein [PE89] für die Energie der Peakneutronen herangezogen.

Nach Abbildung 5.11 erklärt das Abstandsgesetz einen Anteil von etwa 7 % an der Flußdichteabnahme im Stack von vorne nach hinten. Unter Einbeziehung dieses Effekts zeigen die Rechnungen nach Pearlstein für die hintere Folie beider Stacks eine Überschätzung von etwa 7 %, die unter Verwendung des geometrischen Wirkungsquerschnittes liegen dagegen um etwa 4 % unterhalb der experimentellen Werte. Im Falle der Berechnung nach Pearlstein gibt die Einbeziehung des Abstandsgesetzes eine Verbesserung der Beschreibung, bei der Benutzung von  $\sigma_{\text{geo}}$  läßt sich dies nicht eindeutig entscheiden. Festzuhalten bleibt, daß dieses einfache Modell  $\exp(-\Sigma_{\text{geo}} \cdot d)/r^2$  innerhalb der angegebenen Abweichungen in der Lage ist, die Aktivitätsabnahmen quantitativ zu erklären. Für genauere Aussagen ist wiederum auf die Anwendung von Monte-Carlo-Methoden zu verweisen, die die Energieabhängigkeit des Absorptionsquerschnittes berücksichtigen (Kapitel 6.2.3.2).

Mit den Experimenten UPPN07/08 wurde nur die quantitative Beschreibung der Flußdichteabnahme zwischen zwei *Punkten* (vorne und hinten) untersucht. Zusätzlich dazu erlaubt der rechte Teil von Abbildung 5.10 auch den Vergleich zwischen den theoretisch berechneten und experimentell gemessenen *Aktivitätsverläufen*. Entsprechend der individuellen Zusammensetzungen der Stacks zeigt sich für jedes Experiment ein charakteristischer Gradient der spezifischen Aktivitäten, der am Anfang des Stacks größer ist, da dort die stärker absorbierenden Materialien mit hoher Massenzahl  $A$  plaziert waren. Diese experimentspezifische Form des Aktivitätsverlaufes wird von den Rechnungen qualitativ wiedergegeben.

Die theoretischen Daten zeigen die berechnete Flußdichte an den Punkten vor und nach den Folien. Die in einem Target induzierte Aktivität liegt somit zwischen diesen beiden Werten, was durch die eingezeichnete Dicke der Folie berücksichtigt wird. Im Gegensatz dazu ist die Aktivitätsabnahme in den drei Folien der Experimente UPPN07/08 (Abbildung 5.11) jeweils gleich und die relative Abnahme wurde auf die Position vor der Folie bezogen.

Die quantitative Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment ist zum großen Teil sehr gut, sie zeigt jedoch Abweichungen bis 6%. Diese liegen außerhalb der relativen Unsicherheiten der gezeigten  $^{58}\text{Co}$ -Responseintegrale untereinander, die kleiner 1% sind. Die Ursache hierfür ist wiederum in der mangelnden Qualität der Wirkungsquerschnitte und der Einfachheit des Modells zu sehen. Die experimentelle Bestimmung der Flußdichteschwächung wird somit im Rahmen der angegebenen Unsicherheiten durch Rechnungen mit dem vorgestellten Modell *nicht* ersetzt.

### 5.2.3.3 Einfluß sekundärer Protonen

Außer den Restkernen Neutronen-induzierter Reaktionen wurden auch Nuklide nachgewiesen, die nur durch Protonen erzeugt werden. Das sind die (p,n)-Produkte aus Eisen, Kupfer und Blei, die in Tabelle 5.6 aufgelistet sind. Da die Protonen aus dem Beschleuniger nach Durchgang durch das Lithiumtarget in den Beamdump abgelenkt werden, kann die Erzeugung dieser Restkerne nur durch im Stack produzierte sekundäre Protonen erklärt werden.

Diese entstehen als Nebenprodukte der Neutronen-induzierten Kernreaktionen; ihre Flußdichte steigt zum einen mit der Massenbelegung des Stacks und zum anderen mit der Primärenergie der einfallenden Neutronen an. Während (p,n)-Produkte zu trennen sind von den eigentlich interessanten durch Neutronen-induzierte Reaktionen produzierten Restkernen, ist für letztere die Abtrennung der Anteile der Protonen-induzierten Reaktionen nicht so einfach möglich. Da die Produktion durch sekundäre Protonen unerwünscht ist, wird im folgenden deren Anteil an der Gesamtproduktion eines Restkernes abgeschätzt. Damit wird beurteilt, ob dieser vernachlässigt werden kann oder ob eine Korrektur dafür notwendig ist.

Zur Berechnung der Produktion von Restkernen durch sekundäre Protonen ist die Kenntnis ihrer spektralen Flußdichte nötig. Da diese experimentell nicht zugänglich ist, erfolgt die Berechnung in der Regel mit Monte-Carlo-Methoden. Das zur Verfügung stehende Programmsystem leistete dies jedoch nicht. Daher wird im folgenden eine einfache Methode vorgestellt, mit der eine Abschätzung des Einflusses der sekundären Protonen auf die Restkernproduktion erfolgt.

Für diese Abschätzung wurde die spektrale Flußdichte der sekundären Protonen der mit dem Programm ALICE-IPPE (Ignatyuk-Niveaudichte, Massenoption XMSC) [SH95A, GL98A, GL98B] berechneten winkelintegrierten Protonenproduktion gleichgesetzt. Diese wurde mit den Einschüßenergien 75 MeV (UPPN01), 95 MeV (UPPN09) und 160 MeV (UPPN0B) für die Materialien  $^{nat}\text{Cu}$ ,  $^{nat}\text{Fe}$  und  $^{nat}\text{Pb}$  berechnet. In Abbildung 5.12 sind diese spektralen Flußdichten am Beispiel von Kupfer gezeigt; sie setzen sich aus einem Evaporationspeak ( $E_{\text{Proton}} < 15$  MeV) und dem Anteil der im Präequilibrium emittierten Protonen mit Energien oberhalb von etwa 15 MeV zusammen.

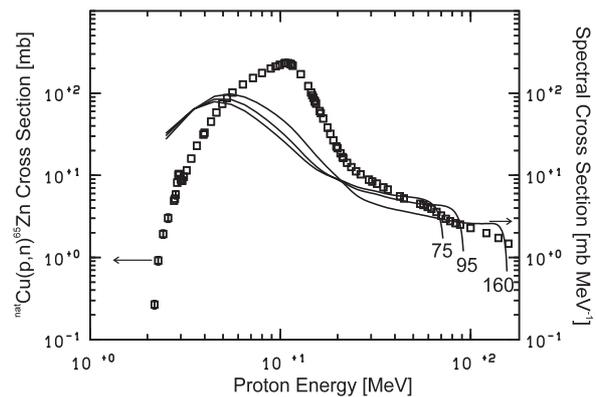


Abbildung 5.12 Anregungsfunktion der Reaktion  $^{nat}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$  und der winkelintegrierten Protonenproduktion durch die Reaktion  $^{nat}\text{Cu}(n,p)$  berechnet mit ALICE-IPPE. Die Werte zur Protonenproduktion geben die Einschüßenergie der Neutronen in MeV an.

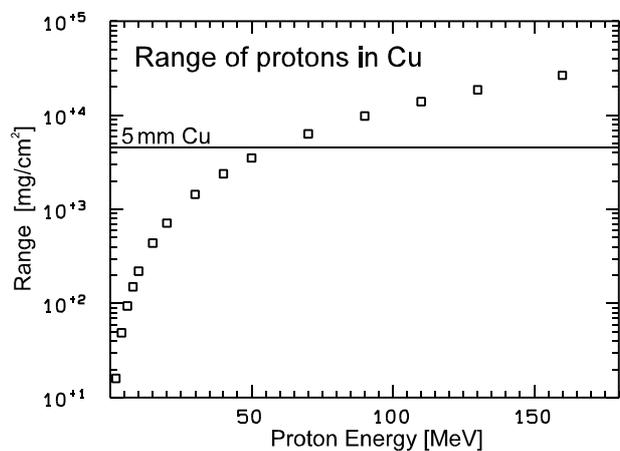


Abbildung 5.13 Reichweite von Protonen in Kupfer.

Die derart angenommene spektrale Flußdichte stellt nur eine Näherung der wahren dar, da zum einen nur die Produktion durch Neutronen der angegebenen Maximalenergie berechnet wird und zum anderen der Teilchentransport im Stack nicht berücksichtigt wird. Dieser Ansatz sollte trotzdem hinreichend gut sein, da die Materialien für Protonen mit Energien kleiner als 160 MeV ein hohes Bremsvermögen besitzen. Abbildung 5.13 zeigt dazu anhand von Kupfer, daß Protonen mit Energien kleiner als 50 MeV beim Passieren von 5 mm Kupfer vollständig abgebremst werden. Würde der Gesamtstack aus Kupfer bestehen ( $59 \text{ g/cm}^2$ ), wäre ein Proton mit 160 MeV nach knapp der Hälfte davon vollständig abgebremst. Zudem haben die höherenergetischen, weiterreichenden Protonen nach Abbildung 5.12 nur den geringeren Anteil an der Quellflußdichte - etwa 30 % für  $E_p > 20 \text{ MeV}$ . Infolgedessen ist die Erzeugung von Restkernen durch die sekundären Protonen lokal auf die umgebenden Folien beschränkt, so daß die Vernachlässigung des Transports in erster Näherung keine zu großen Fehler verursachen sollte.

Aus den mit dieser spektralen Flußdichte und mit den experimentell bekannten Anregungsfunktionen - Abbildung 5.12 zeigt diese etwa für das Produkt  $^{65}\text{Zn}$  - berechneten Faltungsintegralen ergeben sich aus der Normierung auf das in den Folien gemessene Responseintegral die in Tabelle 5.6 angegebenen Flußdichten sekundärer Protonen. Die Schwankungsbreite der Werte um etwa einen Faktor 20 zeigt, daß aus diesem einfachen Modell nur eine Größenordnung für die Protonenflußdichte folgt, die bei etwa  $8 \cdot 10^3 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  liegt.

Tabelle 5.6 Durch sekundäre Protonen induzierte Reaktionen und ihre Schwellenenergien  $E_s$  sowie die aus den experimentellen Responseintegralen nach dem im Text vorgestellten Modell berechneten Protonenflußdichten  $\phi$ .

Reaktion	$E_s$ [MeV]	$\phi (E_s < E < E_{\text{peak}})$ $10^3 [\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}]$		
		UPPN01	UPPN09	UPPN0B
$^{\text{nat}}\text{Cu}(p,n)^{65}\text{Zn}$	2.17	5.8	8.5	4.7
$^{\text{nat}}\text{Fe}(p,xn)^{56}\text{Co}$	5.44	2.5	7.4	1.4
$^{\text{nat}}\text{Pb}(p,xn)^{206}\text{Bi}$	4.56	-	15	29

Verglichen mit der Flußdichte von Neutronen, die bei einem typischen Experiment ( $3 \mu\text{A}$ , 4 mm Li-Target) etwa  $1.8 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  beträgt, so ist die Protonenflußdichte etwa einen Faktor 250 geringer. Der Einfluß der sekundären Protonen auf die Restkernproduktion ist also in erster Näherung zu vernachlässigen, zumal die Protonenflußdichte für Reaktionen mit hohen Schwellenenergien entsprechend den Spektren in Abbildung 5.12 noch abnimmt.

## 5.2.4 Ergebnisse der Experimente UPPN0C/0D

Mit der Experimentreihe im Januar 1998 wurden zum ersten Mal TFBCs angewendet, um die Flußdichte der Neutronen direkt am Ort der Bestrahlungskammer zu messen. Die Ergebnisse dieser Messungen zeigen, daß mit dieser Technik die Peakfluenz der Neutronen am Ort des Stacks angegeben werden kann [PR98]. Da diese Methode zum ersten Mal eine direkte Messung der Flußdichte ermöglichte, ist dieses Ergebnis für den Fortgang der Experimente und für die nachfolgenden Auswertungen von großer Bedeutung. Denn die Kenntnis der Flußdichte der Neutronen ist zur Bestimmung der Anregungsfunktionen unerlässlich (Kapitel 3.2).

Im Rahmen der Bestrahlungsreihe stellen die Experimente UPPN0C/0D im wesentlichen eine Wiederholung der Experimente UPPN07/08 unter Einbeziehung der TFBCs dar, um die mit beiden Methoden gemessene Abnahme der Flußdichte zu vergleichen. Nach Abbildung 4.3 wurden diesmal die Aktivitäten der kurzlebigen Restkerne in den Kupfertargets gemessen, die in der vorderen Position direkt hinter den TFBCs und der hinteren Position direkt vor den TFBCs plaziert waren. Als Absorbermaterialien wurden Graphit (UPPN0C) und Kupfer (UPPN0D) verwendet.

Da die Absorption der Neutronen auch in den 6 mm dicken Kupferfolien selbst nicht vernachlässigt werden darf, mußte eine Korrektur angebracht werden, die dies berücksichtigt und die die Aktivitäten der Targets auf die Position vor das vordere Kupfertarget beziehungsweise hinter die hintere Kupferfolie

bezieht. Dazu wurde unter der Näherung  $\Sigma \cdot d \ll 1$  die Exponentialfunktion des Ausdruckes  $\exp(-\Sigma \cdot d)/r^2$  bis zur zweiten Ordnung entwickelt und die Terme wurden über die Dimension der Folien integriert. Die Integration ist von der Wahl der Wirkungsquerschnitte nahezu unabhängig, da die Ergebnisse unter Anwendung der Querschnitte Pearlsteins [PE89] um weniger als 1 % von denen unter Benutzung des geometrischen Querschnitts abweichen.

Die Korrektur hebt für UPPN0C das Verhältnis der spezifischen Aktivitäten(hinten/vorne) um 5 %, für UPPN0D um 4.8 % an. Darüber hinaus wird die Flußdichte auch in den TFBCs verringert; die Verringerung dadurch wird mit 1 % [PR98] abgeschätzt. Die TFBC-Ergebnisse in Tabelle 5.7 sind jedoch ohne Berücksichtigung dieses Effekts angegeben, der das Verhältnis der Fluenz(hinten/vorne) um 2 % anheben würde.

Tabelle 5.7 Relative spezifische Aktivitäten ( $^{61}\text{Cu}$  und  $^{56}\text{Mn}$ ) beziehungsweise Fluenz der Peakneutronen (Information der 11 und 17 mm TFBCs) [PR98] und die zugehörigen Rechnungen (C) nach den im Text beschriebenen Methoden für die Experimente UPPN0C/0D.

	UPPN0C		UPPN0D	
	vorne	hinten	vorne	hinten
TFBC	1	$0.810 \pm 0.047$	1	$0.665 \pm 0.034$
$^{61}\text{Cu}$	$1 \pm 0.052$	$0.856 \pm 0.058$	$1 \pm 0.047$	$0.651 \pm 0.035$
$^{56}\text{Mn}$	$1 \pm 0.120$	$0.896 \pm 0.120$	$1 \pm 0.060$	$0.682 \pm 0.037$
$C-\sigma_{\text{geo}}+1/r^2$	1	0.747	1	0.617
$C\text{-[PE89]}+1/r^2$	1	0.810	1	0.672

Die relativen Ergebnisse der Messungen sind in Tabelle 5.7 angegeben. Sie zeigen eine gute Übereinstimmung innerhalb der Unsicherheiten, insbesondere zwischen den TFBC-Fluenzen und den mit den geringeren Unsicherheiten behafteten spezifischen Aktivitäten von  $^{61}\text{Cu}$ . Die TFBC-Fluenzen beziehen sich nur auf die Peakneutronen, die Daten der Reaktionen  $^{\text{nat}}\text{Cu}(n,xn)^{61}\text{Cu}$  und  $^{\text{nat}}\text{Cu}(n,4pxn)^{56}\text{Mn}$  mit  $E_s = 20.1$  MeV beziehungsweise  $E_s = 34.3$  MeV jedoch schließen alle Neutronen mit Energien oberhalb dieser ein. Die gute Übereinstimmung der TFBC-Ergebnisse mit denen der Aktivierung zeigt somit wiederum, daß auch für diese Reaktionen der Einfluß der Änderung der relativen spektralen Flußdichte auf die Erzeugung der Aktivität vernachlässigbar ist. Die Abnahme der spezifischen Aktivitäten gibt somit direkt die Schwächung der Peakflußdichte wieder.

Die Rechnungen nach dem oben vorgestellten Modell mit den Querschnitten nach Pearlstein beschreiben die experimentellen Ergebnisse bemerkenswert gut. Insbesondere ist die Übereinstimmung mit den TFBC-Messungen hervorzuheben, da sich diese wie auch die Rechnungen auf die Peakneutronen beziehen. Dies weist auf die bessere Qualität des Ansatzes nach Pearlstein gegenüber dem geometrischen hin, auf dessen Basis die experimentellen Daten (ohne  $^{56}\text{Mn}$ ) für dieses Experiment um bis zu 15 % unterschätzen werden.

### 5.2.5 Responseintegrale der Restkernverteilungen

Zur Bestimmung der Responseintegrale der Restkerne wurden insgesamt 944 Spektren ausgewertet, aus denen 550 Responseintegrale für 119 Reaktionen bestimmt wurden; diese finden sich in Anhang E.

Wie bereits in der Einleitung zu diesem Kapitel 5.2 erwähnt, haben diese als Ergebnisse von Einzelexperimenten wenig Aussagekraft. Dennoch wird im folgenden der zukünftige Fortgang der Arbeit, die Entfaltung der Anregungsfunktionen, wenigstens prinzipiell demonstriert. Dafür wird die Reaktion  $^{\text{nat}}\text{Ag}(n,xn)^{105g}\text{Ag}$  herangezogen, für die zum Ende dieser Arbeit bereits Responses für vier Bestrahlungen mit experimentell ausgemessenen spektralen Flußdichten und Fluenzen vorliegen. Diese Reaktion hat darüber hinaus den Vorteil, daß ein Literaturvergleich mit der Anregungsfunktion von Schrewe et al. [SC92A] möglich ist.

Die Entfaltung wurde mit dem Programm STAYSL [PE77, LY96] durchgeführt, das die *a priori*-Anregungsfunktion im Rahmen der Unsicherheiten an die experimentell gemessenen Responseintegrale anpaßt. Zur Erstellung der *a priori*-Anregungsfunktion wurden Rechnungen mit dem Programm ALICE-IPPE (Ignatyuk-Niveaudichte, Massenooption XMSC) [SH95A, GL98A, GL98C] durchgeführt. Die hieraus resultierende Anregungsfunktion ist in Abbildung 5.14 mit 'a priori' gekennzeichnet. Da bis 28 MeV die experimentellen Daten von Liskien [LI68] und Bayhurst et al. [BA75] vorliegen, wurde die mit ALICE-IPPE berechnete Anregungsfunktion an den experimentellen Wert bei 28 MeV angepaßt ('a priori adjusted' in Abbildung 5.14). Da diese Anregungsfunktion unterhalb von 28 MeV gut mit den experimentellen Daten übereinstimmt, wurde für diesen Energiebereich die Unsicherheit der Anregungsfunktion gleich der experimentellen (5 %) gesetzt. Für die Energien darüber wurde die Unsicherheit mit 50 % angenommen, da der Vergleich theoretisch berechneter Anregungsfunktionen mit experimentellen Daten für diesen Energiebereich Abweichungen in dieser Größenordnung ergibt.

Das Entfaltungsverfahren liefert dann die in Abbildung 5.14 mit 'STAYSL' bezeichnete Anregungsfunktion sowie die zugehörigen Unsicherheitsgrenzen („uncertainty limits“). Diese weist keine starken Veränderungen in Bezug auf die 'a priori adjusted'-Anregungsfunktion auf, denn die mit letzterer berechneten Responseintegrale weichen bereits um nur maximal 18 % von den gemessenen ab.

Der Verlauf der Unsicherheitsgrenzen in Abhängigkeit der Neutronenenergie weist für die Peakenergien der spektralen Flußdichten lokale Minima in der Unsicherheit auf. Das bedeutet gerade, daß für eine über den gesamten Energiebereich genaue Bestimmung der Anregungsfunktion viele Bestrahlungen mit Neutronen quasimonoenergetischer spektraler Flußdichten nötig sind.

Ebenfalls in Abbildung 5.14 eingetragen ist die von Schrewe et al. [SC92A] bestimmte Anregungsfunktion, die mit Responseintegralen aus sechs Bestrahlungen mit Neutronen quasimonoenergetischer spektraler Flußdichten das Least-Squares-Adjustment mit dem Programm STAYSL vornahm. Da ihre Ergebnisse auf  $^{107}\text{Ag}$  als Target normiert sind, wurden die Resultate auf die natürliche, in dieser Arbeit

benutzte Zusammensetzung des Silbers umnormiert. Während die Resultate von Schrewe et al. [SC92A] für den niederenergetischeren Peak der (n,3n)-Reaktion auf Grund der Anpassung an die experimentellen Daten gut mit den Ergebnissen dieser Arbeit übereinstimmen, ergeben sich für den zweiten Peak des vorwiegend beitragenden (n,5n)-Kanals am  $^{109}\text{Ag}$  größere Diskrepanzen. Die Hauptgründe dafür werden wahrscheinlich sein, daß Schrewe et al. zur Erstellung ihrer *a priori*-Anregungsfunktion

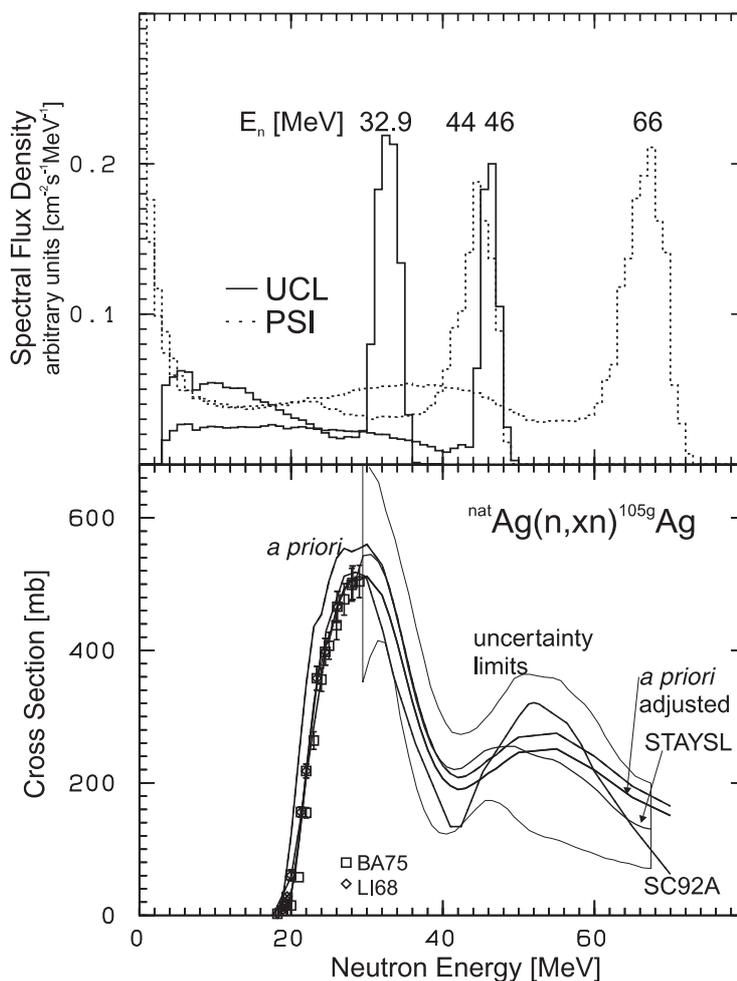


Abbildung 5.14 Spektrale Flußdichten der Experimente PSIN01/02 und LOUV01/02 (oben) und die Ergebnisse der vorläufigen Entfaltung für die Reaktion  $^{\text{nat}}\text{Ag}(n,xn)^{105\text{g}}\text{Ag}$  (unten). Weitere Erklärungen siehe Text.

theoretische Rechnungen des älteren ALICE-Codes [BL83] der Präequilibriumreaktionen benutzt haben und ihnen mehr Experimente zur Entfaltung vorlagen.

Das zeigt einen weiteren wichtigen Gesichtspunkt auf: Das Ergebnis der Anpassung hängt entscheidend von der Güte der verwendeten *a priori*-Anregungsfunktionen ab. Daher sollten für eine physikalisch sinnvolle Erstellung dieser die neusten Codes zur Berechnung genutzt werden. Zusätzlich sollte darauf geachtet werden, ob für bestimmte Reaktionskanäle spezielle Programme existieren, die gerade Effekte dieses Kanals besonders gut berechnen - zum Beispiel wird die Emission von  $\alpha$ -Teilchen im Präequilibrium nur vom ALICE-IPPE-Code [SH95A] berücksichtigt und dieses Programm ist somit für diese Reaktionskanäle anderen vorzuziehen.

### 5.3 Fazit der experimentellen Ergebnisse

Zur Erweiterung der Datenbasis von Produktionswirkungsquerschnitten von Restkernen in Protonen-induzierten Reaktionen wurde der Schwerpunkt der Untersuchungen auf die Messung der experimentell schwer nachweisbaren Restkerne  $^{44}\text{Ti}$  und  $^{55}\text{Fe}$  aus ihren kosmophysikalisch relevanten Targetelementen Titan, Eisen und Nickel beziehungsweise Eisen gelegt. Für  $^{44}\text{Ti}$  vervollständigen die Meßwerte dieser Arbeit für alle drei Targetelemente die Literaturdaten und es liegen nun physikalisch sinnvolle und in sich konsistente Anregungsfunktionen hierfür vor.

Im Falle des Restkerns  $^{55}\text{Fe}$  wurden zum ersten Mal im Rahmen unserer Arbeitsgruppe Produktionsquerschnitte angegeben. Die Übereinstimmung mit Literaturdaten für die Produktion aus Eisen zeigt die Machbarkeit, diese Daten mit X-Spektroskopie ohne vorherige chemische Aufarbeitung der Targets zu messen. Weitere Messungen zur Überprüfung der Querschnitte mit dieser alternativen Methode, zur Erstellung und Vervollständigung der Anregungsfunktionen aus weiteren Targetelementen sowie zur Messung von Dicktarggetproduktionsraten müssen folgen.

Der Hauptteil der experimentellen Ergebnisse besteht aus den Untersuchungen zu den Bestrahlungen mit Neutronen quasimonoenergetischer spektraler Flußdichten. Die Bestrahlungen am TSL waren die ersten ihrer Art. Mit einem ersten erfolgreichen Testexperiment wurde daher zunächst die Feasibility für Aktivierungsexperimente an einer Position in der Marble Hall festgestellt. An dieser wurde daraufhin eine Bestrahlungskammer installiert, an der eine Experimentreihe mit dem Ziel der Aktivierung begonnen wurde. Aus den ersten dieser Bestrahlungen wurden die Responseintegrale für die Entfaltung bereitgestellt, die nach der Auswertung der vollständigen Experimentreihe durchgeführt werden wird.

Im Rahmen der Experimente wurden jedoch auch Bestrahlungen durchgeführt, die Aussagen zur Änderung der relativen spektralen Flußdichte sowie der Flußdichte selbst zum Ziel hatten. Dies ist von entscheidender Bedeutung für den weiteren Fortgang und die Auswertung der Experimente, da nur ein genaues  $\varphi_E$  als Eingangsgröße in die Entfaltung sinnvolle Ergebnisse liefert. Dabei muß die Änderung beim Passieren des Folienstapels sowie zwischen den Positionen der Marble Hall und der Blue Hall untersucht werden. Für beide Aspekte zeigte sich, daß eine vollständige Interpretation der Aktivierungsergebnisse bezüglich der Änderung von  $\varphi_E$  und  $\varphi$  nur mit Monte-Carlo-Methoden möglich ist.

Die Ergebnisse solcher Simulationen müssen jedoch experimentell für die jeweiligen Bestrahlungen überprüft werden. Im Falle der Änderung der Flußdichte  $\varphi$  in Abhängigkeit der Folienposition erfolgt dies mit Hilfe der Kupfermonitorfolien, die zwischen den einzelnen Elementfolien plaziert werden.

Die Untersuchung der Änderung von  $\varphi_E$  zwischen den Positionen der Marble Hall und der Blue Hall ist nötig, da eine experimentelle Bestimmung von  $\varphi_E$  mit Hilfe der TOF-Technik nur in der Blue Hall möglich ist,  $\varphi_E$  aber am Ort der Bestrahlungskammer gefragt ist. Dieser Gesichtspunkt betrifft somit zukünftige Experimente, bei denen gleichzeitig zur Aktivierung TOF-Messungen vorgenommen werden.

Für den hierzu nötigen Vergleich von Theorie und Experiment können auf experimenteller Seite Aktivierungsergebnisse von Einzelfolien aus Kupfer, Nickel oder Kobalt an beiden Experimentorten dienen. Gerade diese Elemente bieten die Möglichkeit, eine Vielfalt von Aktivierungsprodukten unterschiedlichster Reaktionstypen zu messen. Die Aktivierung als Einzelfolien ist nötig, um den Aufbau von Sekundärteilchenfeldern in den Targets zu vermeiden, wodurch der gesuchte Effekt überlagert wird.

## 6 Theoretische Betrachtungen zum Neutronentransport im Stack

Aus der Gesamtheit der Responseintegrale einzelnen Reaktionen entfaltet werden. Für jede Folie eines Stacks, für die ein Responseintegral zur Eingabe in die Entfaltung gemessen wurde, muß dazu auch eine eigene spektrale Flußdichte  $\varphi_E$  vorliegen (Kapitel 3.2).

Normalerweise ist es experimentell nur möglich,  $\varphi_E$  vor und hinter dem Stack zu messen, wie dies bei den Bestrahlungen am UCL erfolgt (Kapitel 4.2.3). Zu beachten ist jedoch, daß sich die spektrale Flußdichte  $\varphi_E$  der einfallenden Neutronen beim Passieren des Stacks durch die Wechselwirkung mit dem Targetmaterial ändert (Kapitel 5.2.3.2). Daher muß auf theoretische Methoden zurückgegriffen werden, möchte man die Variation der spektralen Flußdichte in Abhängigkeit von der Position im Stack untersuchen und somit für jede Folie eine individuelle spektrale Flußdichte bestimmen.

Als Eingangsgröße für eine solche Berechnung der Veränderung der spektralen Flußdichte wird die der einfallenden Neutronen benötigt; idealerweise wird diese experimentell bestimmt. Dazu verwendet man gewöhnlich die TOF-Methode, die allerdings mehrere Meter Flugstrecke für die Neutronen benötigt. Die Flugzeittechnik kann somit an der Neutronenbeamline des TSL nur an der Bestrahlungsposition in der Blue Hall angewendet werden, eine Messung der spektralen Flußdichte am Ort der Bestrahlungskammer in der Marble Hall ist damit nicht möglich. Daher müssen für die Erstellung der spektralen Flußdichte der primären Neutronen theoretische Methoden erarbeitet werden.

Das Ziel dieses Kapitels ist es zu zeigen, wie für jede Folie im Stack eine individuelle spektrale Flußdichte bestimmt wird. Nach dem oben ausgeführten werden dazu als erster Schritt Methoden aufgezeigt, mit denen die spektrale Flußdichte der primären Neutronen erstellt werden kann. Diese wiederum wird dann als Eingabe für die theoretische Simulation des Durchganges der Neutronen durch den Stack und somit für die Berechnung der Änderung der primären spektralen Flußdichte mit der Folienposition benutzt.

### 6.1 Die spektrale Flußdichte der Neutronen der ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ -Reaktion

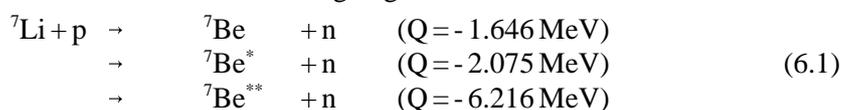
In einem einführenden Kapitel wird zunächst vorgestellt, aus welchen Komponenten sich die bei in dieser Arbeit ausgenutzten Reaktion  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$  erzeugte spektrale Flußdichte der Neutronen zusammensetzt. Mit diesem Hintergrundwissen werden dann Methoden aufgezeigt, mit denen die spektrale Flußdichte alternativ zur Messung möglichst genau bestimmt werden kann.

#### 6.1.1 Komponenten der spektralen Flußdichte

Nach Abbildung 1.2 setzt sich die spektrale Flußdichte aus einem hochenergetischen Peak direkt unterhalb der Energie der Protonen sowie einem niederenergetischem Kontinuum zusammen.

##### 6.1.1.1 Monoenergetische Komponenten des Hochenergiepeaks

Die hochenergetischen Neutronen des Peaks werden durch die Reaktionen von Protonen der Energie  $E_p$  am  ${}^7\text{Li}$  zum Grundzustand sowie zum ersten und zweiten angeregten Zustand des  ${}^7\text{Be}$  nach



erzeugt, wodurch monoenergetische Neutronen dreier verschiedener Energien  $E_n$  entstehen. Deren Energien  $E_n$  werden bei Emission unter dem Winkel  $\vartheta$  nach den Gesetzen der klassischen Mechanik zu

$$E_n = E_p \frac{m_p m_n}{(m_n + m_{Be-7})^2} \cdot (2\cos^2\vartheta + \alpha\beta \pm 2\cos\vartheta\sqrt{\cos^2\vartheta + \alpha\beta}), \quad \alpha = \frac{m_{Be-7}(m_{Be-7} + m_n)}{m_p m_n}, \quad \beta = \frac{Q}{E_p} + \left(1 - \frac{m_p}{m_{Be-7}}\right) \quad (6.2)$$

berechnet [BE64], wobei  $m_x$  die Massen der Reaktionspartner und  $Q$  die  $Q$ -Werte der Reaktionen sind.

Die Breite des Energieintervalls, in das die so berechneten Energien fallen, wird durch die Energieunschärfe der aus dem Beschleuniger extrahierten Protonen, durch deren Abbremsung im Lithiumtarget sowie durch das dabei auftretende Energiestraggling nach Gleichung (3.17) bestimmt.

Innerhalb des Energiefensters des Peaks bilden die monoenergetischen Komponenten der Reaktion zum Grund- und ersten angeregten Zustand des  ${}^7\text{Be}$  in der Regel unaufgelöst gemeinsam den Hochenergiepeak. Dagegen können die Neutronen der Reaktion zum zweiten angeregten Zustand - abhängig von der Auflösung der Energiemessung - vom Hochenergiepeak getrennt detektiert werden.

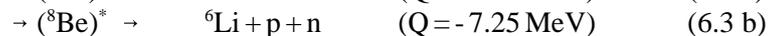
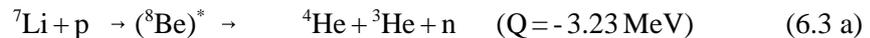
Die Neutronen der Reaktion zum zweiten angeregten Zustand wurden bei der Konstruktion der spektralen Flußdichte allerdings nicht weiter berücksichtigt, da sich aus den experimentellen spektralen Flußdichten nicht ableiten läßt, in welchem Maße diese beitragen. Die Vernachlässigung dieser Komponente ist jedoch zu vertreten, da die Neutronen dieser Reaktion nur in einem wenige MeV breiten Energiebereich etwa 6 MeV unterhalb des Peaks produziert werden und sie zumeist keine große Änderung der Struktur der spektralen Flußdichte bewirken.

### 6.1.1.2 Komponenten kontinuierlicher Energien

Neben dem Hochenergiepeak besteht das Neutronenspektrum aus dem kontinuierlichen Low-Energy-Tail unterhalb der Peakenergie. Diese Neutronenkomponente setzt sich aus einem hochenergetischen Präequilibriumanteil sowie einem Evaporationsbeitrag des equilibrierten Compoundkerns zusammen.

Darüber hinaus konkurriert der Kanal der Compoundkernreaktion mit der sogenannten „Fermi-Break-Up“-Reaktion. Denn der leichte  ${}^7\text{Li}$ -Kern besitzt nur etwa 40 MeV totale Bindungsenergie. Ist die von einem Proton mit einer Energie zwischen 30 bis 180 MeV im Kern deponierte Anregungsenergie mit der totalen Bindungsenergie vergleichbar, dann ist ein möglicher Prozeß zum Abregen des Kerns das Aufbrechen in Nukleonencluster und einzelne Nukleonen, der sogenannte Fermi-Break-Up-Prozeß.

Neutronen werden zum Beispiel über die Dreikörperaufbruchreaktionen aus dem angeregten Zwischenkern  ${}^8\text{Be}$  nach



erzeugt. Wegen ihrer hohen  $Q$ -Werte - Reaktion (6.3 a) hat den höchsten  $Q$ -Wert für eine Dreikörperaufbruchreaktion des  ${}^8\text{Be}$  - ist zu erwarten, daß die Reaktionen (6.3) einen großen Beitrag zur Neutronenproduktion leisten. Denn die Wahrscheinlichkeit, in drei Cluster aufzubrechen, verhält sich mit  $E_{\text{kin}}^2$  [BO87], wobei  $E_{\text{kin}}$  die totale kinetische Energie aller Cluster im Moment des Aufbruchs ist, in die der  $Q$ -Wert unmittelbar eingeht. Daß die Aufbruchreaktionen (6.3) zur Produktion der Kontinuumsneutronen maßgeblich beitragen, wird durch die Untersuchung experimenteller spektraler Flußdichten  $\varphi_E(E_n)$  für niedrige  $E_p$  ( $\lesssim 90 \text{ MeV}$ ) bestätigt [NA98].

Der Neutronenstrom  $I_n$  aus dem Lithiumtarget ergibt sich zu  $I_n = \sigma({}^7\text{Li}(p,n)) \cdot I_p \cdot d(\text{Li})$ , wobei  $I_p$  der Protonenstrom auf das Lithiumtarget mit der Dicke  $d(\text{Li})$  [Dimension: Länge<sup>2</sup>] ist. Die spektrale Flußdichte  $\varphi_E(E_n)$  der Neutronen ist somit proportional zum doppelt differentiellen Wirkungsquerschnitt  $d\sigma/(dE_n d\Omega)$ . Letzterer läßt sich mit der goldenen Regel nach  $d\sigma/(dE d\Omega) = 2h^{-2} \cdot \mu_p \cdot k_p^{-1} \cdot \mathbf{M}^2 \cdot \rho$  [OH65] herleiten, wobei  $\mu_p$  die reduzierte Masse und  $(h \cdot (2\pi)^{-1}) \cdot k_p$  der relative Impuls von Target und Projektil ist. Wird die Energieabhängigkeit des Matrixelementes  $\mathbf{M}^2$  vernachlässigt, so wird im Laborsystem  $\varphi_E(E_n)$  durch die Phasenraumfunktion  $\rho(E_n)$  beschrieben [OH65]:

$$\rho(E_n) \propto \sqrt{\left( E_n \left[ \frac{m_2 + m_3}{m_n + m_2 + m_3} \cdot E_{tot}^c - E_n + 2a_1 \cos \vartheta \sqrt{E_n - a_1^2} \right] \right)} \text{ mit}$$

$$E_{tot}^c = Q + \frac{m_{Li-7}}{m_p + m_{Li-7}} E_p \quad \text{als Gesamtenergie im Schwerpunktsystem und} \quad (6.4)$$

$$a_1 = \frac{\sqrt{m_n m_p E_p}}{m_p + m_{Li-7}}.$$

Hierbei sind  $m_2$  und  $m_3$  jeweils die Massen der zwei weiteren in den Reaktionen (6.3 a) und (6.3 b) entstehenden Fragmente.

## 6.1.2 Semiempirische Beschreibung der spektralen Flußdichte

Die Berechnung der spektralen Flußdichte  $\varphi_E(E_n)$  wurde mit den in Kapitel 6.1.1.1 und 6.1.1.2 beschriebenen kinematischen Gleichungen untersucht. Mit diesen wird jedoch nur die relative spektrale Flußdichte berechnet. Da dies für die monoenergetische *und* die kontinuierliche Komponente gilt, fehlt die Information, in welchem Verhältnis die Flußdichten beider Beiträge stehen. Um diese Lücke zu schließen, wurden gemessene spektrale Flußdichten auf ein systematisches Verhalten hinsichtlich des Verhältnisses der Flußdichte des Peaks und des Kontinuums untersucht.

Die Güte der Berechnung wird durch den Vergleich mit experimentellen Daten überprüft. Dabei auftretende Abweichungen zwischen Theorie und Experiment geben Aufschluß über Mängel und nötige Erweiterungen der Berechnungsmethode. Dies und die Anpassung der Flußdichten beider Komponenten auf der Grundlage experimenteller Daten führt dazu, daß dieses Konstruktionsverfahren der spektralen Flußdichte semiempirisch ist.

### 6.1.2.1 Die spektrale Flußdichte der Peakneutronen

Als erster Schritt zur Beschreibung des Neutronenspektrums aus der  ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ -Reaktion wird im folgenden die spektrale Flußdichte  $\varphi_{E_{Peak}}(E_n)$  der Peakneutronen untersucht. Diese wurde mit Gleichung (6.2) unter Berücksichtigung der Bremsung der Protonen mit Primärenergie  $E_p$  im Lithiumtarget um die Energie  $E_{loss}$  berechnet. Dabei wurde die energetische Verteilung der aus dem Beschleuniger extrahierten Protonen um  $E_p$  durch eine Gaußfunktion mit der Breite des Energiefehlers  $\Delta E$  angenommen:

$$\varphi_{E_{Peak}} \propto \int_0^\infty dE' \int_{E_p - E_{loss}}^{E_p} dE_i \int_{E_i - 5\Delta E}^{E_i + 5\Delta E} dE e^{-(E_i - E)^2 / 2\Delta E^2} \delta(E' - E_n(E)) \quad (6.5)$$

Hierbei ist  $\delta(E' - E_n)$  die Diracsche Deltafunktion.

Bei der Berechnung wurde die Verbreiterung der Energieverteilung der einfallenden Protonen durch das Straggling nach Gleichung (3.17) nicht berücksichtigt. Diese Unsicherheit beträgt am Ende eines 8 mm dicken Lithiumtargets für 100 MeV Protonen 0.17 MeV, 56 % des mit der TOF-Methode gemessenen Energiefehlers  $\Delta E = 0.3$  MeV, für 160 MeV Protonen auf ein 15 mm Target 0.23 MeV, etwa ein Viertel von  $\Delta E = 1$  MeV. Da dies für die Bestrahlungen am TSL bereits die maximalen zusätzlichen Unsicherheiten dadurch sind, wurde die Verbreiterung durch das Energiestraggling vernachlässigt.

Der Peak setzt sich nach Gleichung (6.1) aus den Neutronen zusammen, die aus den Reaktionen zum Grundzustand (Neutronen  $n_0$ ) und zum ersten angeregten Zustand (Neutronen  $n_1$ ) des  ${}^7\text{Be}$  führen. Das Verhältnis beider Beiträge zum Peak wurde der Arbeit von Poppe et al. [PO76] entnommen und unabhängig von  $E_p$  zu  $n_1/n_0 = 0.3$  angesetzt. Diese Annahme ist insofern unsicher, als daß Poppe et al. nur bis  $E_p = 26$  MeV gemessen haben. Batty et al. [BA68] geben für 50 MeV ein um 100 % unsicheres Verhältnis von 0.4 an; für höhere Energien wurden keine weiteren Messungen hierzu gefunden. Die

Mischung der Neutronen  $n_1$  und  $n_0$  im angegebenen Verhältnis führt zu einer Verringerung der mittleren Energie des Peaks um 0.1038 MeV gegenüber der Berücksichtigung des Grundzustandes allein.

Die Ergebnisse der Rechnungen sind exemplarisch zusammen mit den am UCL gemessenen  $\varphi_{E_{\text{Peak}}}$  in Abbildung 6.1 gezeigt. Der Vergleich der Ergebnisse der Rechnungen nach Gleichung (6.5) mit den experimentellen Daten ergibt eine gute Übereinstimmung der  $\varphi_{E_{\text{Peak}}}$  hinsichtlich der mittleren Energie  $E_n$  der Peakneutronen, das heißt, der mit der spektralen Flußdichte des Peaks gewichteten Neutronenenergie. Die experimentellen  $E_n$  liegen nur 0.08 MeV höher als die berechneten, lediglich für die Bestrahlung mit  $E_p = 62.8$  MeV ergibt sich eine um 0.18 MeV geringere theoretische Energie. Die berechneten  $E_n$  der Neutronen  $n_0$  allein stimmen somit sogar etwas besser mit den experimentellen Daten überein. Aus prinzipiellen Gründen und wegen der geringen Energiedifferenz von nur 0.1 MeV wurden jedoch die Neutronen  $n_1$  nicht vernachlässigt.

Bezüglich der Beschreibung der Peakbreite ist anzumerken, daß sich die experimentellen und berechneten Daten nicht direkt vergleichen lassen. Denn die Messung mit der TOF-Technik bewirkt eine Verbreiterung der experimentellen Daten durch die Meßmethode selbst. Für einen Vergleich von Theorie und Experiment müßte diese meßtechnisch bedingte Verbreiterung aus den Daten entfaltet werden. Die gute Übereinstimmung der berechneten und experimentellen spektralen Flußdichten bei  $E_p = 36.4$  MeV für die zwei Dicken des Lithiumtargets zeigt aber trotzdem, daß der rechnerische Ansatz vernünftig ist.

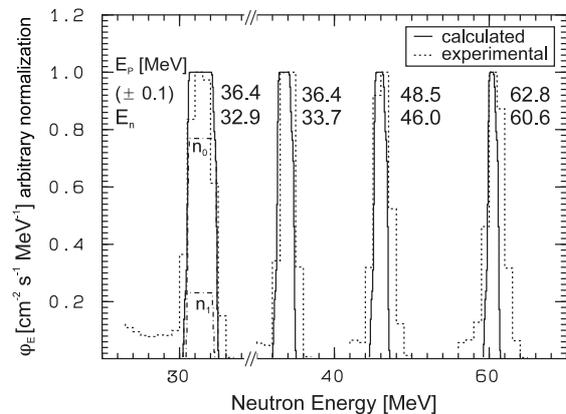


Abbildung 6.1 Berechnung der spektralen Peakflußdichten nach Gleichung (6.5) für 3 mm Lithiumtargets (drei rechte Peaks) [SC97] und ein 5 mm Lithiumtarget (linker Peak, Experiment LOUV02).  $n_0$  und  $n_1$  geben den Anteil der Neutronen am Peak an, die aus der Reaktion zum Grundzustand und zum ersten angeregten Zustand des  ${}^7\text{Be}$  resultieren. Angegeben sind die Protonenenergien  $E_p$  und die mittlere Energie der Peakneutronen  $E_n$ .

### 6.1.2.2 Die spektrale Flußdichte der kontinuierlichen Komponente

Nachdem im vorangegangenen Kapitel die Beschreibung der Peakneutronen behandelt wurde, folgt nun die Untersuchung der kontinuierlichen Komponente. Die Berechnung dieser wurde nach Gleichung (6.4) durchgeführt. Prinzipiell ist es mit dem auf Monte-Carlo-Methoden basierenden Code LAHET [PR93] ebenfalls möglich, die spektrale Flußdichte der Neutronen zu berechnen, da LAHET das Fermi-Break-Up-Modell beinhaltet. Die Anwendung von Gleichung (6.4) gestaltet sich jedoch gegenüber der aufwendigen Berechnung mit LAHET [PR93] sehr viel einfacher und wird deshalb vorgezogen. In einem zweiten Schritt könnte LAHET zur Verfeinerung des Modells hinzugezogen werden (siehe Kapitel 6.1.3).

Neutronen, die bei den Compoundkern- und Präequilibriumreaktionen entstehen, werden im folgenden nicht in Betracht gezogen. Eine Möglichkeit, die spektralen Flußdichten von Neutronen dieser Reaktionstypen zu erstellen, stand in dieser Arbeit auch nicht zur Verfügung. Denn das Programm AREL [BL83], das die Beiträge dieser Reaktionen berechnet, sollte auf das hier betrachtete System von nur acht Nukleonen infolge des in ihm implementierten statistischen Modells nicht angewendet werden [LY93]. Die Vernachlässigung dieser Neutronen stellt nachteilig eine Fehlerquelle dar, die bei Auftreten von Diskrepanzen diskutiert werden muß. Allerdings wird durch die alleinige Anwendung der Gleichung (6.4) auch die Einfachheit des Modells gewahrt.

Für die Anwendung von Gleichung (6.4) werden die Beiträge der Reaktionen (6.3 a) und (6.3 b) betrachtet. In welchem Verhältnis beide Reaktionen zur Neutronenproduktion beitragen, wird prinzipiell durch Anwendung des Fermi-Break-Up-Modells berechnet, was in dieser Arbeit jedoch nicht durchgeführt wurde (siehe oben).

Für niedrige Einschußenergien ( $\lesssim 30$  MeV) ist dies jedoch auch nicht nötig. Denn für diese kann man die Beiträge beider Reaktionen am kontinuierlichen Spektrum aus experimentellen Spektren extrahieren. Dies macht Abbildung 6.2 (oben) deutlich, in der die mit Gleichung (6.4) berechneten  $\varphi_E$  der Reaktionen (6.3 a) und (6.3 b) sowie deren Summe dargestellt sind. Für die Summenbildung wurden die Maxima beider  $\varphi_E$  auf gleiche Werte normiert. Dies ist ein Beispiel mit einem hohen Anteil von Reaktion (6.3 b), bedenkt man dessen geringeren Q-Wert gegenüber Reaktion (6.3 a).

Der bei der Summenbildung zustandekommende ‘Knick’ in der spektralen Flußdichte bei etwa 28 MeV macht es möglich, zunächst die  $\varphi_E$  aus Reaktion (6.3 a) an die experimentellen Daten in dem Bereich anzupassen, in dem sie alleine beiträgt (in Abbildung 6.2 für die Energien 28 bis 33 MeV). Die  $\varphi_E$  der Reaktion (6.3 b) wird dann derart gewählt, daß die experimentelle spektrale Flußdichte im Bereich darunter ( $E_n \lesssim 28$  MeV) optimal wiedergegeben wird. Derartige Phasenraumanalysen gemessener spektraler Flußdichten zeigen, daß für niedrige Einschußenergien beide Reaktionen signifikante Beiträge liefern [NA97].

Jedoch ist der Knick nicht in allen experimentellen Spektren zu erkennen, was an der begrenzten energetischen Auflösung der Meßmethoden liegt. Daher ist eine Phasenraumanalyse in der oben angesprochenen Art und Weise nicht immer möglich und ein Zusammenhang des Verhältnisses der Beiträge beider Reaktionen in Abhängigkeit von  $E_p$  kann nicht hergestellt werden. Dieser hätte zur Berechnung des kontinuierlichen Spektrums genutzt werden können. Daß dies für höhere Energien ( $E_p \geq 70$  MeV) nicht zwingend notwendig ist, zeigt Abbildung 6.2 (unten) am Beispiel einer Bestrahlung mit 100 MeV Protonen. Bereits für die Energien unterhalb von 80 MeV weicht die Summe der Beiträge beider Reaktionen (6.3 a) und (6.3 b) nur um weniger als 5 % von dem Beitrag der Reaktion (6.3 a) allein ab. Verwendet man daher für die Bestrahlung mit solch hohen Energien für die Berechnung der kontinuierlichen Komponente den Beitrag aus Reaktion (6.3 a) allein, so wird nur für etwa 15 MeV unterhalb der Peakenergie ein Fehler gemacht, der Großteil des Spektrums wird jedoch richtig beschrieben. Da zudem die Aufbruchreaktion (6.3 b) infolge des niedrigeren Q-Wertes weniger wahrscheinlich sein wird als Reaktion (6.3 a), werden die Fehler durch die alleinige Verwendung des Beitrages der Reaktion (6.3 a) noch kleiner sein als in Abbildung 6.2 (unten) dargestellt. Daher wird im folgenden zur Konstruktion der spektralen Kontinuumsflußdichte Reaktion (6.3 a) allein verwendet.

Für die derart berechnete spektrale Flußdichte des Kontinuums muß nun deren integrale Flußdichte mit der Peakflußdichte ins Verhältnis gesetzt werden. Dazu wurden aus experimentell gemessenen spektralen Flußdichten die Kontinuums- und die Peakflußdichten berechnet, wofür 18 Spektren zur Verfügung standen, die am RIKEN [NA97, NA98], am IUCF [BY89], am UCL [SC97] sowie am TIARA [BA97] bestimmt wurden.

Das Ergebnis zeigt Abbildung 6.3, in der die Verhältnisse  $\varphi_{\text{Peak}}/\varphi(E_n \geq 20 \text{ MeV})$  der Peakflußdichten zu den Kontinuumsflußdichten ( $E_n \geq 20$  MeV) über der Protonenenergie  $E_p$  aufgetragen sind. Die Integrationsgrenze von 20 MeV ergibt sich dadurch, daß die experimentellen Daten nur bis zu einer

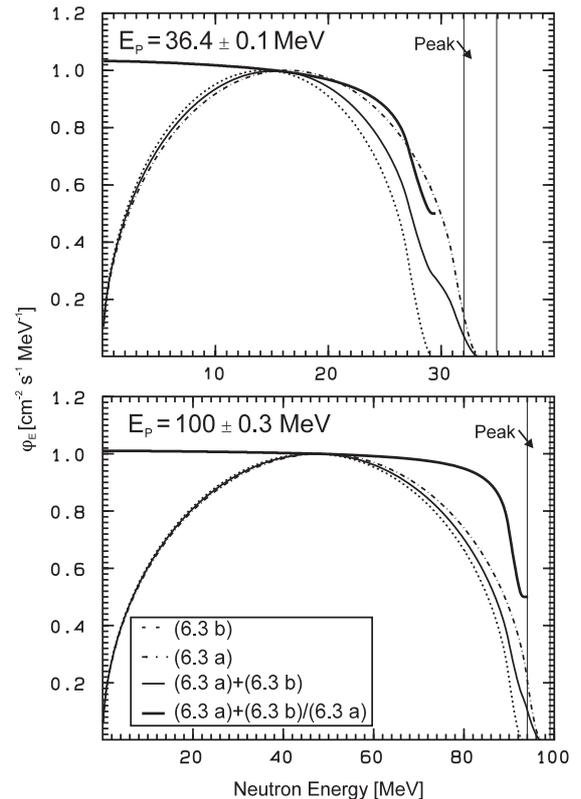


Abbildung 6.2 Berechnung der spektralen Flußdichte  $\varphi_E$  der kontinuierlichen Komponente nach Gleichung (6.4). Die vertikalen Linien markieren die Peakneutronen für  $E_{\text{loss}} = 2.18$  MeV (oben) und  $E_{\text{loss}} = 3$  MeV (unten). Die  $\varphi_E$  der Komponenten sind so skaliert, daß deren Maxima bei  $\varphi_E = 1 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ MeV}^{-1}$  liegen.

unteren Grenzenergie von etwa 20 MeV vorliegen. So ergibt sich durch den wachsenden Peakanteil unterhalb von 50 MeV ein stark ansteigender Verlauf. Oberhalb davon resultiert für  $\varphi_{\text{Peak}}/\varphi(E_n \geq 20 \text{ MeV})$  ein Plateau bei einem Verhältnis von etwa 0.45. Dies ist auch der Mittelwert der in Abbildung 6.3 eingerahmten Daten von 50 bis 100 MeV.

Mit diesem Verhältnis wurde das Kontinuum der spektralen Flußdichten mit dem Beitrag aus Reaktion (6.3 a) unter Anwendung der Gleichung (6.4) berechnet. Die Ergebnisse für die acht in diesem Energiebereich vorliegenden experimentellen spektralen Flußdichten sind in Abbildung 6.4 gezeigt, in der die Maximalwerte der Peaks auf eins normiert wurden. Die Rechnungen für die Peaks sind nicht mit eingezeichnet, da die dafür nötigen Dicken der Lithiumtargets und die Fehler der Protonenenergien nicht vollständig vorlagen.

Die Rechnungen zeigen für die beiden Spektren mit  $E_p = 54.4$  und  $62.8$  MeV im ansteigenden Bereich direkt unterhalb des Peaks eine Überschätzung der experimentellen Werte und eine falsche Beschreibung der Schwellenenergie für den Einsatz des Kontinuums. Dies läßt sich nach Abbildung 6.2 mit dem

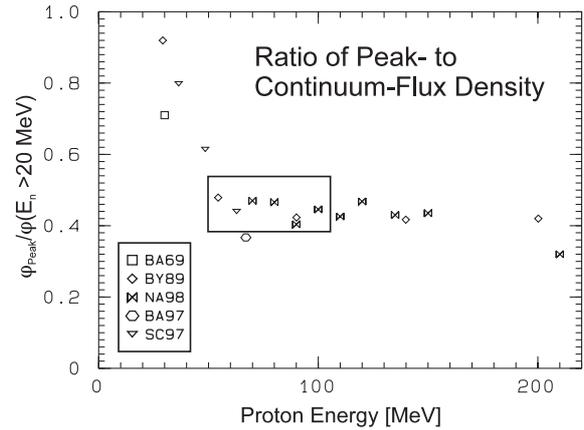


Abbildung 6.3 Verhältnis der Peak- zu Kontinuumsflußdichten für spektrale Flußdichten, die an verschiedenen Beschleunigeranlagen gemessen wurden. Lag die spektralen Flußdichten nur bis zu einer Energie größer als 20 MeV vor, so wurde  $\varphi_E$  bis 20 MeV konstant fortgesetzt.

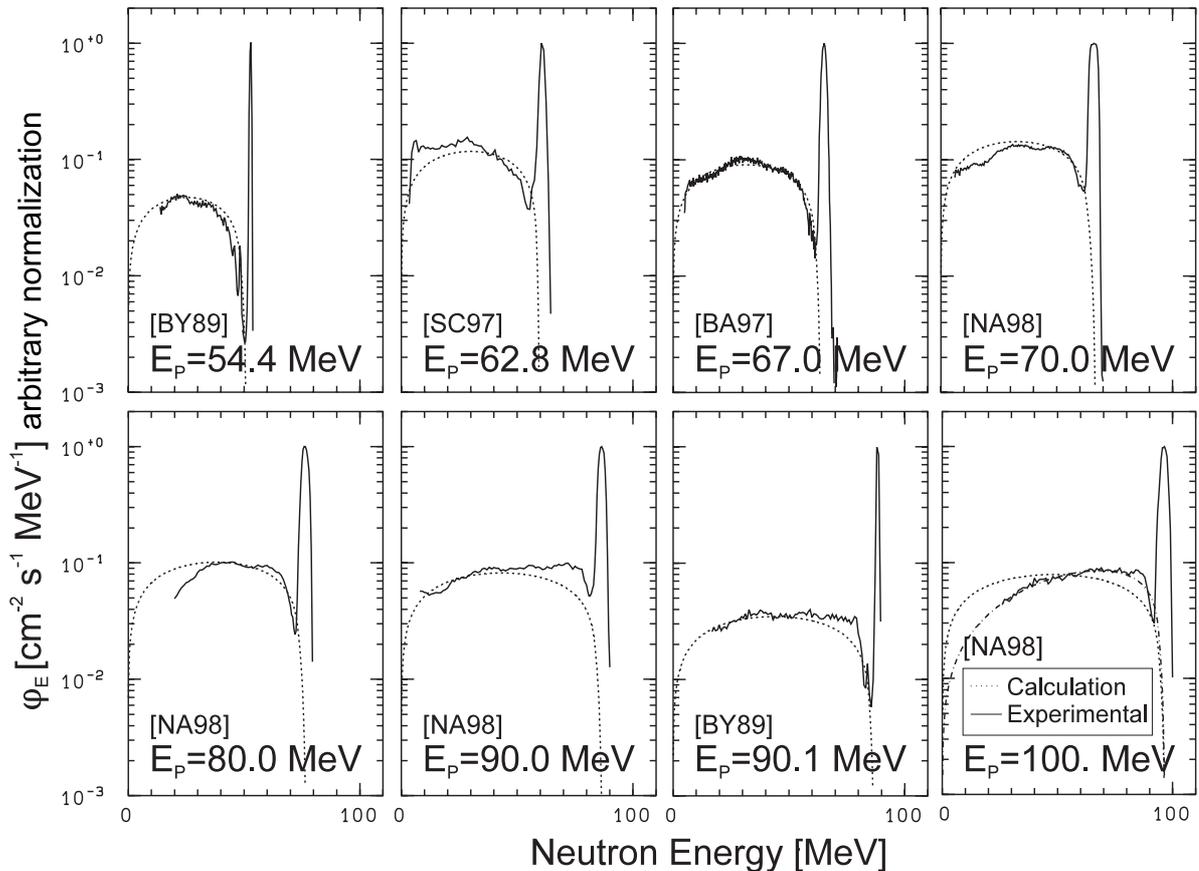


Abbildung 6.4 Experimentell gemessene quasimonoenergetische spektrale Flußdichten (durchgezogen) im Vergleich mit der im Text beschriebenen Modellierung des Kontinuums (gestrichelt). Für das 100 MeV-Spektrum ist außerdem die Berechnung nach Gleichung (6.6) (gestrichpunktet) eingezeichnet.

vernachlässigten Anteil der Reaktion (6.3 b) erklären, wodurch das Spektrum in diesem Energiebereich überschätzt wird. Daher darf für Einschußenergien in diesem Bereich die zweite Komponente für eine akkurate Beschreibung nicht vernachlässigt werden.

Für die Spektren mit  $E_p$  zwischen 67 und 90.1 MeV erhält man über große Energiebereiche eine sehr gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment. Allerdings ergeben sich gravierende Abweichungen bis zu 100 % für die Randbereiche: Für die Spektren mit  $E_p = 70$  und 80 MeV im Bereich von 20 MeV, für die zwei höherenergetischen direkt unterhalb des Peaks.

Eine Ursache für die auftretenden Diskrepanzen ist, daß die Flußdichte des Kontinuums auf das mittlere Verhältnis  $\varphi_{\text{Peak}}/\varphi(E_n \geq 20 \text{ MeV})$  normiert wurde. Die Anwendung des direkt aus dem experimentellen Spektrum berechneten Verhältnisses würde zu einer verbesserten Beschreibung führen und zum Beispiel im Falle des Spektrums mit  $E_p = 70$  MeV die etwas zu hoch berechneten Daten um 13 % senken.

Zusätzlich zu diesem Normierungsproblem sind auch Abweichungen bezüglich der relativen spektralen Flußdichte festzustellen. So läßt sich zum Beispiel für die spektrale Flußdichte mit  $E_p = 80$  MeV beobachten, daß die experimentellen Werte im Bereich von 20 bis 30 MeV stärker abfallen als dies die Theorie vorhersagt. Hierzu trägt bei, daß die Berechnung nur mit dem Phasenraum nach Gleichung (6.4) allein ein einfaches Modell ist. Vernachlässigt bei dieser Anwendung der Goldenen Regel wird die Energieabhängigkeit des Matrixelementes, das den Übergang vom Anfangs- in den Endzustand beschreibt [OH65].

Strukturen in der relativen spektralen Flußdichte - verursacht durch weitere Reaktionskanäle wie etwa Evaporations- und Präequilibriumsbeiträge - werden außerdem nicht berücksichtigt. Zur Klärung der Diskrepanzen müßte weiterhin untersucht werden, ob sich die relative spektrale Flußdichte des kollimierten Neutronenfeldes von der im Lithiumtarget erzeugten unterscheidet.

Im Falle des Spektrums mit  $E_p = 100$  MeV wird deutlich, daß die berechnete relative spektrale Flußdichte die experimentelle nicht mehr beschreibt. Ausgehend vom hochenergetischen Einsatzpunkt des Kontinuums unterhalb des Peaks fällt die experimentelle spektrale Flußdichte zum Niederenergetischen hin ab. Ein ähnliches Verhalten zeigt sich auch für die weiteren Spektren mit  $E_p > 100$  MeV und dies erfordert somit eine Erweiterung des Modells. Diese wird geleistet, indem der Abfall zu niedrigeren Energien unterhalb einer Maximalenergie  $E_{\text{max}}$  durch Faltung des Spektrums aus der Dreikörperaufbruchreaktion mit einer Geraden der entsprechenden Steigung modelliert wird (Abbildung 6.4):

$$\varphi_E \propto \rho(E_n) \cdot [1 - a(E_p) \cdot (E_{\text{max}}(E_p) - E_n)]; \quad a(E_p) > 0 \quad (6.6)$$

Um daher eine Berechnungsvorschrift für die spektralen Flußdichten mit  $E_p \geq 100$  MeV aufzustellen, muß aus den gemessenen  $\varphi_E$  eine Systematik für  $a(E_p)$  abgeleitet werden. Für die vorliegenden sechs experimentellen  $\varphi_E$  in diesem Energiebereich wurde jedoch kein systematisches Verhalten festgestellt. Daher bieten diese in einer ersten Näherung zunächst nur die Möglichkeit, die aus ihnen abgelesenen  $a(E_p)$  für zu konstruierende spektrale Flußdichten mit benachbarten  $E_p$  zu verwenden.

### 6.1.3 Erstellung der spektralen Flußdichte

Zusammenfassend für die letzten beiden Kapitel läßt sich sagen, daß mit der vorgestellten semiempirischen Konstruktion die Erstellung von  $\varphi_E$  möglich ist. Sie beschreibt den Hochenergiepeak sehr gut. Die kontinuierliche Komponente wird in ihren wesentlichen Charakteristika ebenfalls richtig berechnet, jedoch mit Abweichungen von bis zu 100 % in den angesprochenen Randbereichen.

Zum Aufstellen einer physikalisch sinnvollen spektralen Flußdichte als erste Eingabe für die Untersuchung, wie sich  $\varphi_E$  bei Stackdurchgang ändert, ist dies sicher ausreichend. Jedoch kann dieses Modell nicht die für die Entfaltung der Anregungsfunktionen benötigte spektrale Flußdichte mit einer Genauigkeit von etwa 10 % über den gesamten Energiebereich liefern. Diese genaue Beschreibung ist unerlässlich, sollen die mit ihr entfalteten Anregungsfunktionen aussagekräftig, das heißt, mit geringen Unsicherheiten behaftet sein.

Daher sind weitere experimentelle und theoretische Arbeiten diesbezüglich nötig. Auf theoretischer Seite könnten Berechnungen mit dem Code LAHET, in den für leichte Kerne mit Massenzahlen  $A \leq 20$  das Fermi-Break-Up-Modell implementiert ist, für eine Verbesserung der relativen spektralen Flußdichte des Kontinuums herangezogen werden. Eine systematische Studie *aller* in der Literatur veröffentlichten, gemessenen spektralen Flußdichten auf die Form des Kontinuums hin könnte ebenfalls dazu beitragen.

Eine weitere Möglichkeit zur Extraktion des Kontinuums stellen die am UCL gemessenen Monitorfunktionen des Targetelementes Kupfer dar. Nach Abschluß der Experimentreihe dort sind die Anregungsfunktionen am Kupfer bis 70 MeV gut bekannt. Für Reaktionen, deren Anregungsfunktionen sich für die Energien darüber wenig ändern, werden mit Hilfe der Anpassung theoretischer Modellrechnungen recht gut bekannte Monitoranregungsfunktionen bis 180 MeV konstruiert. Mit Hilfe dieser und einer Guess-Funktion für die spektrale Flußdichte, kann durch Least-Squares-Adjustment ein bestes Kontinuum der spektralen Flußdichte für das jeweilige Experiment entfaltet werden. Die Guess-Funktion kann wie vorgestellt konstruiert und mit Hilfe der TFBC-Messungen absolut skaliert werden.

Der Nachteil dieser Methode ist, daß dann aus den Bestrahlungen selbst keine Wirkungsquerschnitte mehr für das Targetelement Kupfer bestimmt werden können, da  $\varphi_E$  an diese bereits angepaßt ist. Außerdem fußt das Verfahren auf akkuraten Monitoranregungsfunktionen, für deren Konstruktion möglichst mindestens sechs Bestrahlungen mit experimentell bestimmten  $\varphi_E$  und äquidistanten Primärenergien vorliegen sollten. Nur dann ist es möglich, die Unsicherheit der entfalteten Anregungsfunktionen über den gesamten Energiebereich gering zu halten. Diese, die Anpassung der Theorierechnungen im Hochenergetischen und die Entfaltung von  $\varphi_E$  liefern jedoch insgesamt eine erhöhte Unsicherheit gegenüber einem experimentell bestimmten  $\varphi_E$ .

Die Messung von  $\varphi_E$  mit TOF-Methoden in der Blue Hall würde ein  $\varphi_E$  mit den geringsten Unsicherheiten liefern. Der Übertrag dieses  $\varphi_E$  auf die Position der Bestrahlungskammer in der Marble Hall muß dem Skalieren der Flußdichte sowie einer möglichen Änderung der relativen spektralen Flußdichte durch das Passieren des Kollimators Rechnung tragen. Für das Absolutskalieren dienen die TFBC-Messungen am Ort des Stacks.

Eine Kontrolle der relativen spektralen Flußdichte könnte durch gleichzeitige Aktivierung von Einzelfolien in der Blue und der Marble Hall erfolgen. Hierfür sollten in der Blue Hall nur wenige Targets verwendet werden, um eine Änderung der relativen spektralen Flußdichte verursacht durch das Passieren der Folien möglichst gering zu halten. Wie in Kapitel 5.2.1.2 gezeigt wurde, ist es jedoch schwierig aus den Aktivierungsergebnissen auf eine Änderung von  $\varphi_E$  für die niedrigeren Energien zu schließen, deren Neutronen hierfür gerade anfällig sind. Diesem leisten Monte-Carlo-Rechnungen Abhilfe, mit denen das Passieren der Kollimatoren simuliert werden könnte.

## 6.2 Transportrechnungen

Die mit den im letzten Kapitel beschriebenen Methoden erstellte spektrale Flußdichte der einfallenden Neutronen dient nun als Eingabe in die Untersuchung, wie sich diese bei Passieren des Stacks ändert.

Bei der Wechselwirkung der Neutronen mit dem Targetmaterial lösen diese zum einen die Kernreaktionen an den Targetkernen aus. Dabei werden die für diese Arbeit eigentlich interessanten Restkerne selbst, aber auch sekundäre Neutronen und Protonen sowie komplexe Teilchen erzeugt, zum Beispiel  $\alpha$ -Teilchen. Das die Kernreaktion auslösende Neutron wiederum wird dadurch aus dem primären Neutronenstrahl absorbiert, wodurch die Fluenz der primären Neutronen mit der Position der Folie im Stack abnimmt. Neben den Kernreaktionen werden die Neutronen durch elastische Stöße an den Targetkernen moderiert und sie verlieren durch unelastische Stöße ihre Energie.

Diese Wechselwirkung der einfallenden Neutronen mit der Bestrahlungskammer und dem Stack wird auf der Grundlage physikalischer Modelle von Codes wie zum Beispiel HERMES [CL88] oder LAHET [PR93] berechnet. Unter Zuhilfenahme von Monte-Carlo-Methoden wird dabei für jedes einzelne Neutron eine Trajektorie simuliert, für die die einzelnen Wechselwirkungsprozesse durch Zufallszahlen ausgewählt werden. Um für die verschiedenen hierbei induzierten Reaktionen und deren Produkte eine

gute Statistik zu erzielen, wird daher im allgemeinen eine ausreichend hohe Anzahl an einfallenden Neutronen für eine Neutroneneinschußenergie simuliert.

In dieser Arbeit wurde für diese Berechnung das gegenüber HERMES neuere Programmsystem LAHET herangezogen. Hierfür muß dem Programm ein sogenanntes Setup bereitgestellt werden, das die verwendeten physikalischen Modelle und die Modellgeometrie definiert (Kapitel 6.2.1). Die mit diesem Setup erzielten Ergebnisse der Rechnungen werden exemplarisch anhand der Resultate der Bestrahlungen UPPN09 und -0B dargestellt (Kapitel 6.2.3.1-3) und mit den in diesen Experimenten gemessenen Aktivitäten verglichen (Kapitel 6.2.3.4).

## 6.2.1 Das Setup der LAHET-Rechnungen

Zur vollständigen Definition eines Setups benötigt man die Eingabedaten für den LAHET-Code, die Wirkungsquerschnitte für die elastische Streuung der Neutronen, die Geometrieingabe für die Anordnung des bestrahlten Materials sowie die Spezifikation der Quellteilchen, mit denen bestrahlt wird. Die wichtigsten dieser Parameter werden im folgenden beschrieben, ein Beispiel einer vollständigen Eingabedatei ist in Anhang F wiedergegeben.

Die Bestrahlung wurde mit der zeitintegrierten primären quasimonoenergetischen spektralen Flußdichte, der spektralen Fluenz  $\Phi_E$ , realisiert, indem diese zunächst in Energiegruppen zerlegt wurde (Kapitel 6.2.2). Für die Energie eines jeden solchen sogenannten Energiebins wurde eine Bestrahlung mit  $8 \cdot 10^5$  Neutronen simuliert. Zum Beispiel wurden für das Experiment UPPN09 Bestrahlungen mit 37 Primärenergien zwischen 20 und 97.5 MeV berechnet, also die Trajektorien von insgesamt  $2.96 \cdot 10^7$  Teilchen. Die Ergebnisse dieser monoenergetischen Bestrahlungen wurden dann gewichtet mit der primären spektralen Fluenz des zugehörigen Energiebins addiert.

Prinzipiell stellt LAHET auch die Möglichkeit zur Verfügung, die spektrale Fluenz der einfallenden Teilchen vollständig in die Spezifikation der Quellteilchen einzugeben und dann mit nur *einer* Berechnung die Bestrahlung zu simulieren. Bei diesem Verfahren besteht allerdings die Gefahr, für die einzelnen Energiegruppen eine schlechte Statistik zu erhalten, da die simulierte Teilchenzahl auf alle Bins verteilt wird und nach oben hin durch die begrenzte Dauer eines Rechenjobs beschränkt ist. Die hier angewendete Methode hat demgegenüber den Vorteil, die spektrale Fluenz der primären Neutronen als Eingabe ändern zu können, ohne die aufwendige Rechnung wiederholen zu müssen.

Für die Simulation einer Einschußenergie mit  $8 \cdot 10^5$  Teilchen weisen die sekundären spektralen Fluenzen der Neutronen in der Regel statistische Unsicherheiten von kleiner als 10 % auf, wenn man diese in Energiebins der Breite 4 MeV ausgeben läßt. Für die Energiegruppen direkt unterhalb der Maximalenergie der spektralen Fluenz der einfallenden Neutronen wurden diese Energiebins kleiner gewählt (0.5 MeV bis 2 MeV), um der für diese Energien stärkeren Variation der primären quasimonoenergetischen spektralen Fluenz Rechnung zu tragen. Dadurch und durch die mit zunehmender Binenergie geringeren Ereigniszahlen der produzierten sekundären Neutronen ergeben sich in diesen Energiegruppen erhöhte statistische Unsicherheiten von teilweise bis zu 100 %.

In den Code sind verschiedene physikalische Modelle [PR93] eingebaut, die optional vom Benutzer gewählt und durch die LAHET-Eingabedaten festgelegt werden. In der Dissertation von Gloris [GL98A] wurden verschiedene in LAHET implementierte physikalische Modelle zur Untersuchung der Restkernproduktion angewendet. Diesen Ergebnissen folgend wurde das ISABEL-Modell (IEXISA=2, ICHOIC=0323) angewendet, für das der intranuklearen Kaskade eine Präequilibriumstufe folgte (IPREQ=1). Für leichte Kerne ( $A \leq 13$  sowie  $14 \leq A \leq 20$  und einer Anregungsenergie unter 44 MeV) wird das Fermi-Break-Up-Modell (IFBRK=1) benutzt, das den Aufbruch in mehrere Cluster anstelle des Präequilibriums berechnet. Die eingehende Niveaudichte greift auf die von Gilbert-Cameron-Cook-Ignatyuk (ILVDEN=0) zurück.

Zur Berechnung der elastischen Streuung der Neutronen wurde die vom Programmsystem zur Verfügung gestellte Datei LELSTIN angewendet, die die Wirkungsquerschnitte zur elastischen Streuung für 98 (NOELAS=98) Materialien und Neutronenenergien bis 100 MeV (ELAS=100) beinhaltet.

Die weitaus aufwendigste und anspruchsvollste Eingabe ist die der Geometrie des zu bestrahlenden Materials, die mit der im Rahmen des Programmsystems MCNP [BR97A] festgelegten standardisierten Schreibweise erfolgte. Als Begrenzung der Bestrahlungskammer wurde ein 2.5 mm dickwandiger hohler Kubus aus Aluminium verwendet, in dem nach Abbildung 4.2 das Eintrittsfenster für die Neutronen, das Shuttle und die aufgereihten Folien positioniert wurden (siehe dazu auch Abbildung 6.10). Die Aluminiumhalterung für die Folien mit 20 und 19 mm Durchmesser innerhalb des Shuttles mit Innendurchmesser 2.5 cm wurde infolge ihrer komplexen Geometrie und geringen Masse vernachlässigt.

Entsprechend dieser Geometrie wurde der Querschnitt des Neutronenstrahls als ein auf die Folien zentrierter Kreis mit einem Radius von 2.4 cm gewählt. Die Dimension des Neutronenstrahls stellt einen Kompromiß dar, um einerseits eine genügende Statistik der Prozesse in den Targets selbst zu erhalten und um andererseits das die Folien umgebende Material adäquat zu berücksichtigen. Denn da die Quellteilchen gleichmäßig über den Strahlquerschnitt verteilt werden, treffen nur etwa 17 % der einfallenden Neutronen direkt auf den Stack.

Neben dieser Näherung beinhaltet die gewählte Geometrie weitere Vereinfachungen gegenüber der realen Bestrahlungssituation. Die Bestrahlung erfolgt mit den Neutronen innerhalb des Radius von 2.4 cm homogen. Nach den Ergebnissen aus Kapitel 5.2.3.1 ist die Homogenität der Bestrahlung jedoch nur über den Targetquerschnitt als gleichförmig gesichert anzunehmen und nicht über den gesamten Kreisquerschnitt mit  $R = 2.4$  cm. Auf Grund der geringen Winkeländerung ( $\leq 2.5^\circ$ ) über diesen Querschnitt ist jedoch in erster Näherung ein konstanter doppelt differentieller Wirkungsquerschnitt zur Produktion der Neutronen in diesem Winkelbereich gerechtfertigt.

Des weiteren wird für die LAHET-Rechnung die Bestrahlung unter  $0^\circ$  angenommen, das heißt, die Neutronen fallen senkrecht auf den Stack ein. Real findet dies unter einem Winkel ( $\approx 2^\circ$ ) statt (Abbildung 4.2). Die Neutronen entfernen sich bei Passieren des 6 cm langen Stacks jedoch nur 2 mm von der  $0^\circ$ -Strahlachse, so daß in erster Näherung von einer senkrechten Bestrahlung ausgegangen wurde.

Die Berechnung der gewünschten physikalischen Größe erfolgte mit dem Code HTAPE aus den von LAHET erzeugten sogenannten „History Files“, in denen die Ergebnisse der stattgefundenen Wechselwirkungsprozesse abgespeichert werden. Mit HTAPE wurde für die Volumen aller bestrahlten Folien die Spurlänge für den Neutronenfluß („Track Length Estimate for Neutron Flux“, IOPT=4) berechnet, aus der sich durch Division mit dem Folienvolumen die Neutronenfluenz ergibt.

## 6.2.2 Wahl der primären quasimonoenergetischen spektralen Fluenzen

Die Ergebnisse der Transportrechnungen hängen entscheidend von der primären spektralen Fluenz ab, da mit dieser die im vorangegangenen Kapitel beschriebenen Bestrahlungen monoenergetischer Neutronen gewichtet werden.

Für die im folgenden betrachteten Bestrahlungen UPPN09 und -0B mit  $E_p = 97.5$  und  $162.7$  MeV liegen keine experimentell gemessenen Spektren vor. Daher wurde  $\Phi_E$  den Ergebnissen des Kapitels 6.1.2 folgend konstruiert. Die monoenergetische Komponente wurde nach Gleichung (6.5) berechnet. Die spektrale Fluenz des Kontinuums wurde nach Kapitel 6.1.2.2 derart berechnet, daß für Gleichung (6.6)  $a(E_p)$  entsprechend der experimentellen  $\Phi_E$  von Nakamura et al. [NA97] bei ähnlichen Einschußenergien  $E_p = 100$  MeV und  $E_p = 150$  MeV gewählt wurde. Dieses Kontinuum wurde an die Peakfluenz  $\Phi_{\text{Peak}}$  mit  $\Phi_{\text{Peak}}/\varphi(E_n \geq 20 \text{ MeV}) = 0.45$  angekoppelt.

Die so berechneten Eingangsspektren der primären Neutronen zur Auswertung der Transportrechnungen sind in Abbildung 6.5 mit den zugehörigen Spektren von Nakamura et al. [NA97] gezeigt. Da die Einschußenergie für UPPN0B nicht mit der des  $\Phi_E$  von Nakamura et al. [NA97] übereinstimmt, weichen die  $\Phi_E$  bezüglich des Kontinuums voneinander ab.

Die Energiegruppen im Niederenergetischen haben äquidistante Breiten von 4 MeV, oberhalb derer sich im Bereich des Peaks eine Verfeinerung des Energierasters anschließt. Die Wahl anderer quasimonoenergetischer Eingangsspektren als die gezeigten ist mit Hilfe der vorliegenden Ergebnisse der monoenergetischen Bestrahlungen aus HTAPE jederzeit möglich und zeigt die Flexibilität der Berechnungs-

methode auf. Allerdings muß dabei das benutzte Energieraster erhalten bleiben. Eine Änderung des gewählten Energiegitters ist durch Einfügen neuer Energiebins möglich; dazu wird dann aber eine erneute Auswertung der LAHET-Rechnungen mit HTAPE unter Verwendung der neuen Stützstellen nötig, die die Sekundärteilchenfluenzen in dem neuen Raster ausgibt.

### 6.2.3 Ergebnisse der Transportrechnungen

Im folgenden werden die Ergebnisse der Transportrechnungen anhand der Experimente UPPN09 und -0B vorgestellt. Bevor der eigentlich interessante Aspekt der Transportrechnungen, die Änderung der spektralen Fluenz der Neutronen bei Stackdurchgang, behandelt wird, wird zum besseren Verständnis dazu zunächst der Aufbau der Sekundär- und die Änderung der Primärteilchenfluenzen beschrieben.

Dabei sind die primären Neutronen die im Lithiumtarget erzeugt und auf den Stack einfallenden Neutronen, die gestreuten und im Stack durch Kernreaktionen produzierten Neutronen dagegen werden als sekundäre bezeichnet. Des weiteren werden in der Diskussion zum einen die gewichteten Fluenzen gezeigt, die sich bei Bestrahlung mit Neutronen der quasimonoenergetischen spektralen Fluenz der primären Neutronen ergeben - letztere wird im folgenden kurz als  $\Phi_{EQM}$  bezeichnet. Im Gegensatz dazu werden die Ergebnisse der LAHET-Rechnungen, die mit *einer* Einschußenergie durchgeführt wurden, als monoenergetische Bestrahlungen abgegrenzt. Deren Resultate wurden *nicht* mit der zugehörigen Gruppenfluenz von  $\Phi_{EQM}$  gewichtet.

Die Normierung der Ergebnisse erfolgte derart, daß für die Berechnung der gewichteten Fluenzen die Fluenz von  $\Phi_{EQM}$  auf  $\Phi=1\text{cm}^{-2}$  normiert war (Kapitel 6.2.2). Im Falle der monoenergetischen Bestrahlungen sind die von HTAPE ausgegebenen Ergebnisse auf die Fluenz der einfallenden Neutronen von  $\Phi = (2.4^2 \pi)^{-1} \text{cm}^{-2}$  normiert. Die in den Abbildungen gezeigten Ergebnisse wurden durch Division mit dieser Fluenz  $\Phi = (2.4^2 \pi)^{-1} \text{cm}^{-2}$  auf die einfallende Fluenz von  $\Phi=1\text{cm}^{-2}$  normiert.

#### 6.2.3.1 Aufbau der Sekundärteilchenfluenzen

Die auf den Stack treffenden primären Neutronen induzieren in den Targetkernen Kernreaktionen, bei denen als Produkte auch einzelne Neutronen emittiert werden, die sekundären Neutronen. Diese werden bei direkten Reaktionen und Präequilibriumzerfällen als höherenergetische Ejektile vorwiegend in Vorwärtsrichtung emittiert, während sie bei Compoundkernreaktionen als niederenergetische Neutronen isotrop verdampft werden.

Entsprechend dieser Prozesse läßt sich der Verlauf der gewichteten Fluenz sekundärer Neutronen über den Stack erklären, der in Abbildung 6.6 für die Experimente UPPN09 und -0B dargestellt ist. Zu sehen ist ein Anstieg der Fluenz vom Anfang bis zur Mitte des Stacks um etwa einen Faktor drei, wo sich ein breites Maximum ausbildet, von dem die Fluenzen zum Stackende um etwa 20 bis 30 % abfallen.

Infolge dessen, daß die Fluenz von  $\Phi_{EQM}$   $\Phi(E_n > 20 \text{ MeV}) = 1 \text{cm}^{-2}$  ist, bedeuten die Absolutwerte der sekundären Fluenzen, daß relativ dazu am Stackanfang UPPN09 etwa 2 %, zur Mitte des Stapels 6 % Sekundärteilchen produziert werden. Für UPPN0B liegen diese Werte leicht darüber, weil durch die höhere Einschußenergie mehr Anregungsenergie im Kern deponiert wird, wodurch wiederum mehr Nukleonen aus dem Kern emittiert werden.

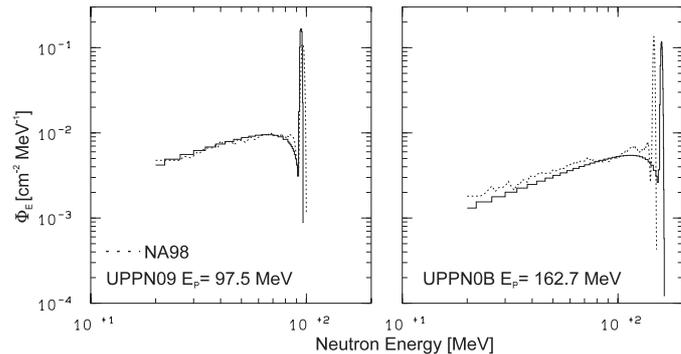


Abbildung 6.5 Experimentell gemessene spektrale Fluenzen (gestrichelt) für die Protonenenergie  $E_p=100$  MeV (links) und 150 MeV (rechts) [NA98, NA97] und die an sie adaptierten spektralen Fluenzen, wie sie für die Experimente UPPN09 und -0B als Eingabe zur Auswertung der LAHET-Rechnungen benutzt wurden (durchgezogene Linie). Die  $\Phi_E$  sind auf  $\Phi(E > 20 \text{ MeV}) = 1 \text{cm}^{-2}$  normiert.

In Abbildung 6.6 sind auch die über einzelne Energiebereiche integrierten Fluenzen  $\Phi_{20}$  ( $20 < E_n < 50$  MeV),  $\Phi_{50}$  ( $50 < E_n < 100$  MeV) und  $\Phi_{100}$  ( $100 < E_n < E_{\max}$ ) aufgetragen. Alle drei Fluenzen zeigen ebenfalls einen starken Anstieg zur Mitte des Stacks, dort ein breites Maximum sowie eine leichte Verminderung zum Ende des Stapels. Dabei nimmt mit zunehmender Energie der unteren Integrationsgrenze die Fluenz ab, ihr Maximum verschiebt sich zu größeren Tiefen und ihr Abfall zum Stackende ist weniger ausgeprägt.

Die größeren Fluenzen für die niedrigeren Neutronenenergien sind zum Hauptteil auf das Wichten mit  $\Phi_{\text{EQM}}$  zurückzuführen, da die einfallenden Neutronen nur sekundäre Teilchen mit geringeren Energien produzieren als sie selbst haben.  $\Phi_{\text{EQM}}$  stellt so nur die 45 % Peakneutronen zur Erzeugung hochenergetischer Neutronen bereit.

Zum anderen nimmt aber auch die sekundäre Produktion mit abnehmender Energie der produzierten Neutronen zu - betrachtet man die monoenergetischen Bestrahlungen für sich. Dies zeigt Abbildung 6.7, in der die sekundären spektralen Fluenzen für zwei Einschußenergien in vier Folien des Experimentes UPPN0B eingezeichnet sind, so daß die wesentlichen Änderungen der sekundären  $\Phi_E$  bei Durchgang des Stacks erfaßt werden.

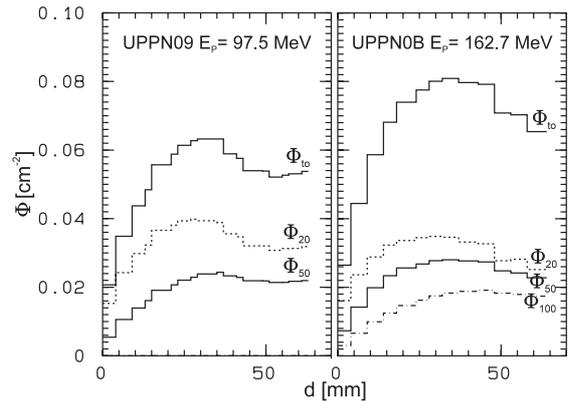


Abbildung 6.6 Gewichtete Fluenzen  $\Phi_{10}$  ( $20 < E_n < E_{\max}$  MeV),  $\Phi_{20}$  ( $20 < E_n < 50$  MeV),  $\Phi_{50}$  ( $50 < E_n < 100$  MeV) und  $\Phi_{100}$  ( $100 < E_n < E_{\max}$  MeV) in den Folien der Stacks UPPN09 und -0B in Abhängigkeit deren Position d im Stapel.

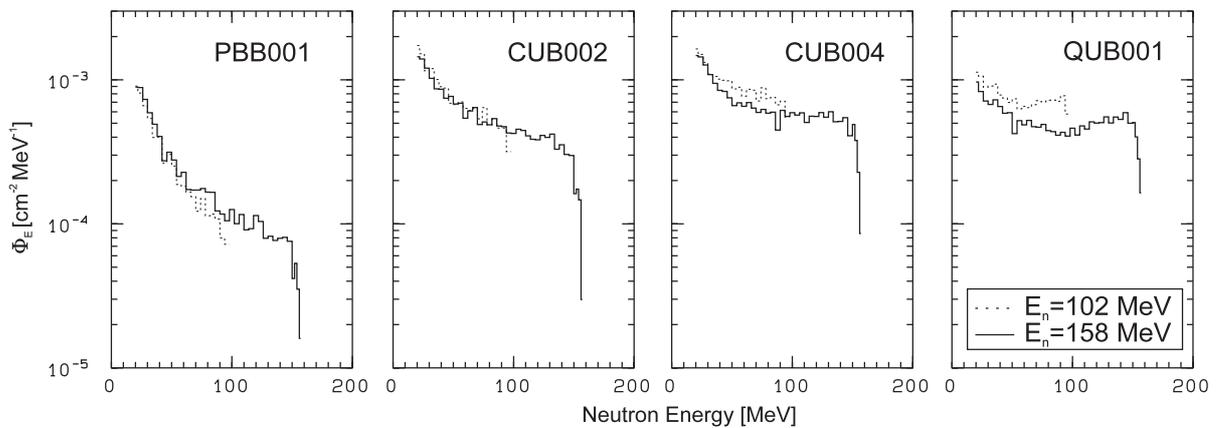


Abbildung 6.7 Spektrale Fluenzen der sekundären Neutronen in der ersten (PBB001), vierten (CUB002), achten (CUB004) und letzten (QUB001 = 13. Target) Folie des Experimentes UPPN0B für die monoenergetischen Bestrahlungen mit den Einschußenergien 102 MeV und 158 MeV.

In der ersten Folie ergibt sich ein zu niedrigen Energien monoton ansteigendes  $\Phi_E$ , das die bevorzugte Produktion der niederenergetischen Neutronen verdeutlicht. Dieser Anstieg flacht in den folgenden Folien ab und es bildet sich zum Ende des Stacks für den Energiebereich unterhalb der Einschußenergie ein Maximum aus. Dieses wird zum einen durch die bei den Kernreaktionen in Vorwärtsrichtung emittierten hochenergetischen Neutronen erzeugt, deren Vorwärtspeaking erst zum Ende des Stacks eine nennenswerte Fluenz dieser Neutronen bewirkt. Zu anderen trägt zu dem hochenergetischen Peak auch die Moderation der Neutronen mit fortschreitender Position im Stack bei.

Dagegen bewirkt die isotrope Verdampfung niederenergetischer Neutronen, daß für diese die Fluenz etwa in der Mitte des Stacks maximal ist, da sich dort die Beiträge der Verdampfungsneutronen vom Anfang und vom Ende des Stacks summieren. Zudem werden die primären Neutronen mit fortschreitender Position im Stack zunehmend absorbiert und produzieren zum Stackende hin weniger Neutronen.

Diesen Sachverhalt verdeutlichen auch die Fluenzen, die in Abbildung 6.8 für die Bestrahlung mit den 158 MeV-Neutronen gezeigt sind. Die Fluenz der niederenergetischen Neutronen weist ein Maximum in der Mitte des Stacks auf, während die Fluenz der hochenergetischen Teilchen erst zum Ende des Stapels maximal wird.

Die ungewichteten Fluenzverläufe für die monoenergetische Bestrahlung in Abbildung 6.8 sind ähnlich denen der gewichteten Fluenzen in Abbildung 6.7. Im Gegensatz dazu unterscheiden sich jedoch die absoluten Größen, verursacht durch das Wichten mit  $\Phi_{EQM}$ . So dominieren für die monoenergetische Bestrahlung die niederenergetischen Neutronen nur bis zur Mitte des Stacks, zum Ende jedoch hat  $\Phi_{100}$  den größten Anteil.

Bisher wurde zur Erklärung der sekundären spektralen Fluenzen nur die Produktion von Neutronen aus Kernreaktionen herangezogen. Allerdings trägt auch die elastische Streuung dazu bei, daß sowohl die sekundären als auch die primären Neutronen Energie verlieren, was sich auf die Bildung der sekundären Fluenzen auswirkt.

Zur Diskussion des Prozesses der elastischen Streuung sind in Tabelle 6.1 die Parameter zur Abbremsung von Neutronen durch elastische Streuung angegeben. Diese zeigen die bekannte Tatsache, daß die Materialien mit niedrigen Massenzahlen A stärker moderieren. So kann ein Neutron bei einem Stoß mit einem  $^{12}\text{C}$ -Kern auf immerhin 71.6 % seiner Energie gebremst werden - trifft es dagegen auf einen  $^{208}\text{Pb}$ -Kern, kann das Neutron nur 98.1 % seiner Anfangsenergie erreichen. Deshalb steigt die Anzahl der Stöße von einem Stoß für einen  $^{12}\text{C}$ -Kern auf zwölf für einen  $^{208}\text{Pb}$ -Kern an, um ein Neutron von 95 MeV auf 85 MeV zu bremsen.

Den Einfluß der elastischen Streuung auf die spektrale Fluenz der sekundären Neutronen im einzelnen zu beurteilen ist schwierig, da die Fluenzen der sekundären Neutronen sowohl durch Kernreaktionen als auch durch die elastische Streuung beeinflusst werden. In der ersten Folie des Stacks UPPN09 (Blei) sind jedoch Strukturen in der spektralen Fluenz der sekundären Neutronen sichtbar, die durch elastische Streuung gedeutet werden.

Abbildung 6.9 zeigt dazu die spektrale Fluenz der monoenergetischen Bestrahlung unterhalb deren Einschußenergie  $E_n = 97.5$  MeV. Die Neutronen mit Energien bis zu  $\alpha E_n = 95.64$  MeV werden durch einmalige elastische Streuung erklärt, wobei die meisten Neutronen in das Energiebin fallen, in dem auch die mittlere Energie nach einem Stoß  $E_n \cdot (1+\alpha)/2 = 96.57$  MeV liegt. Innerhalb der statistischen Unsicherheit signifikant trennt das Minimum bei etwa 95 MeV die elastisch gestreuten Neutronen mit Energien darüber von den durch Kernreaktionen produzierten Sekundärteilchen im Bereich darunter. Relativ zu den primären Neutronen in dieser Folie ( $\Phi = 0.980 \text{ cm}^{-2}$  im Energiebin mit den Grenzen 97.4 und 97.5 MeV) wurden insgesamt 2.35 % Sekundärteilchen ( $E_n = 20 - 97.4$  MeV) produziert. Jedoch liegen nur 1.9 % der Sekundärteilchen im Energiebereich unterhalb des Peaks zwischen 97.4 und 95.5

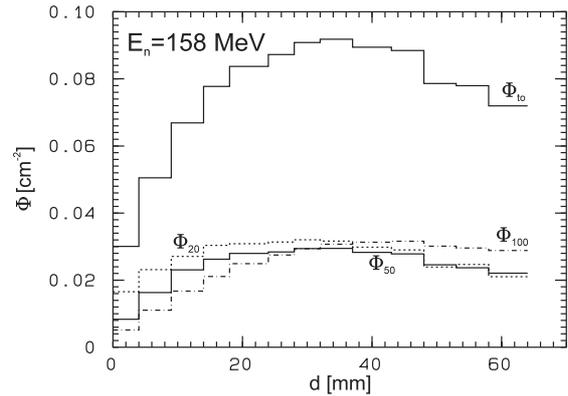


Abbildung 6.8 Fluenzen  $\Phi_{10}$  ( $20 < E_n < E_{\max}$  MeV) (durchgezogen),  $\Phi_{20}$  ( $20 < E_n < 50$  MeV) (gestrichelt),  $\Phi_{50}$  ( $50 < E_n < 100$  MeV) (durchgezogen) und  $\Phi_{100}$  ( $100 < E_n < E_{\max}$  MeV) (gestrichelpunktet) für die monoenergetische Bestrahlung mit 158 MeV-Neutronen in Abhängigkeit der Position d der Folien im Stapel UPPN0B.

Tabelle 6.1 Parameter zur Bremsung von Neutronen in einigen Targetmaterialien.  $\alpha = [(A-1)/(A+1)]^2$  mit Massenzahl A als maximaler relativer Energieverlust bei einem Stoß,  $\xi = 1 + (\alpha \ln \alpha)/(1 - \alpha)$  mittlerer logarithmischer Energieverlust,  $n = \ln(E_Q/E)/\xi$  mittlere Anzahl, um ein Neutron der Energie  $E_Q$  auf die Energie E zu moderieren.

Nuklid	A	$\alpha$	$\xi$	n
$E_Q = 95 \text{ MeV}, E = 85 \text{ MeV}$				
$^{12}\text{C}$	12	0.716	0.158	0.704
$^{27}\text{Al}$	27	0.862	0.0724	1.54
$^{63}\text{Cu}$	63	0.938	0.0317	3.51
$^{107}\text{Ag}$	107	0.963	0.0187	5.95
$^{208}\text{Pb}$	208	0.981	0.00956	11.6

MeV. Für dieses Target spielt der Prozeß der elastischen Streuung relativ zu den Kernreaktionen somit eine untergeordnete Rolle bei der Sekundärteilchenproduktion.

In den auf Blei folgenden Folien bilden sich unterhalb der Einschußenergie nicht mehr derartige Strukturen aus wie beim Blei, da sich für sie in diesem Energiebereich der Transport der hochenergetischen Neutronen aus den davorliegenden Folien überlagert: Der Anteil der elastischen Streuung läßt sich nicht quantifizieren.

Wie in Kapitel 6.2.1 bereits erwähnt wurde, hat auch die Bestrahlung des die Folien umgebenden Materials Einfluß auf die Sekundärteilchenfelder in den Folien.

Dies verdeutlicht Abbildung 6.10, in der die Frontansicht des Geometriesetups abgebildet ist. Durch den Strahlquerschnitt mit einem Radius von 2.4 cm wird auch das Aluminium der Kammer bestrahlt, in der das Shuttle positioniert ist. Die in diesem Aluminium erzeugten sekundären Neutronen werden auch in das Stackvolumen transportiert und haben so Anteil an der dortigen Fluenz sekundärer Neutronen.

Um diesen Anteil zu quantifizieren, wurde exemplarisch die monoenergetische Bestrahlung mit  $E_n = 97.5 \text{ MeV}$  des Stacks UPPN09 mit einem Radius von  $R = 2.4 \text{ cm}$  und mit  $R = 1 \text{ cm}$  simuliert. Die Verhältnisse der Fluenzen aus beiden Bestrahlungen in Abbildung 6.10 zeigen eine monotone Zunahme zum Ende des Stacks; die Fluenzen für die  $R = 2.4 \text{ cm}$ -Bestrahlung sind um einen Faktor 1.2 bis 1.7 höher. Dieser Anstieg wird durch die sich aufbauende internukleare Kaskade im umgebenden Aluminium erklärt. Dadurch nehmen die Fluenzen mit fortschreitender Position im Material zu, so daß aus der Umgebung mehr sekundäre Teilchen in die Folien transportiert werden. Für die akkurate Berechnung der sekundären Teilchenfelder ist also ein genaues Setup des insgesamt bestrahlten Materials nötig.

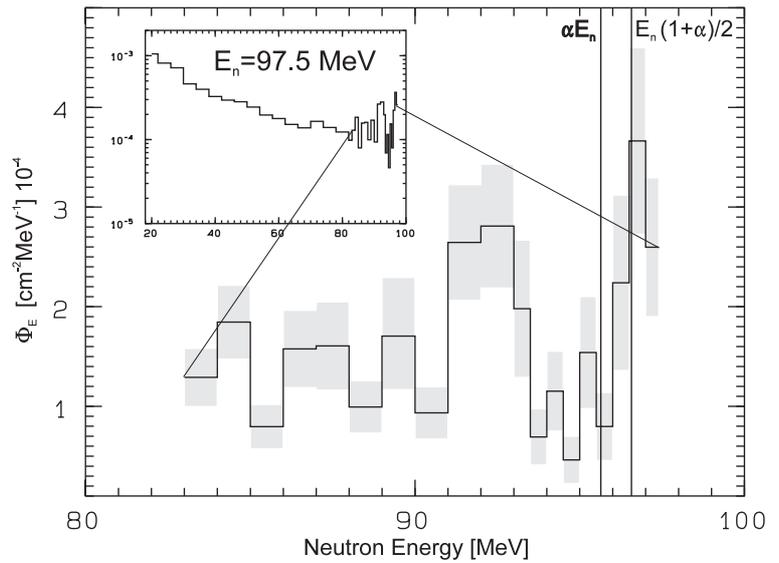


Abbildung 6.9 Spektrale Fluenz der monoenergetischen Bestrahlung mit Einschußenergie  $E_n = 97.5 \text{ MeV}$  in der ersten Folie des Stacks UPPN09, der Bleifolie PB9001. Die schattierten Bereiche für die Gruppenfluenzen markieren deren von LAHET ausgegebenen statistischen Unsicherheiten.

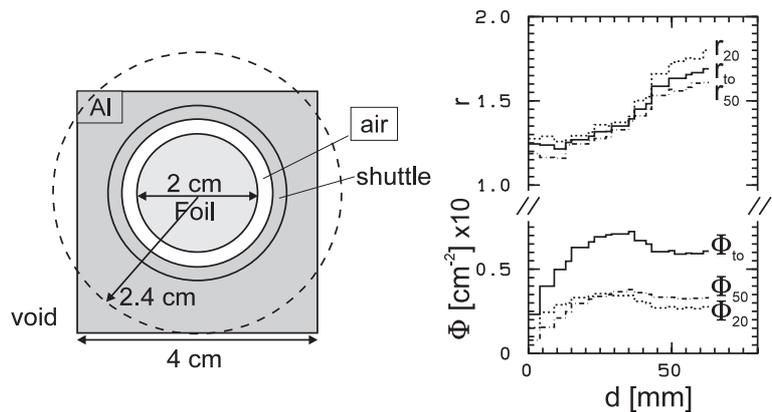


Abbildung 6.10 Vereinfachte, schematische Frontansicht des Geometriesetups (links), das als Eingabe für die LAHET-Rechnungen benutzt wurde. Der gestrichelte Kreis gibt den Querschnitt der Quellneutronen an. Fluenzen (rechts) der monoenergetischen Bestrahlung mit  $E_n = 97.5 \text{ MeV}$  auf den Stack UPPN09 ( $R = 2.4 \text{ cm}$ ) und die Verhältnisse der Fluenzen, wenn man den Querschnitt der Quellneutronen als auf die Folien zentrierten Kreis mit Radius  $R = 1 \text{ cm}$  beziehungsweise  $R = 2.4 \text{ cm}$  wählt:  $r_{10} = \Phi_{10}(R = 2.4 \text{ cm}) / \Phi_{10}(R = 1.0 \text{ cm})$ ; Notation sonst wie zu Abbildung 6.8.

### 6.2.3.2 Verhalten der Primärteilchenfluenzen

Neben den Fluenzen der sekundären Neutronen beeinflußt vor allem auch die Änderung der Fluenz der primären Neutronen bei Stackdurchgang die mit den Ergebnissen der Transportrechnungen berechnete quasimonoenergetische spektrale Fluenz in den Folien, die im folgenden kurz mit  $\Phi_{EQMF}$  bezeichnet wird.

Die Absorption primärer Neutronen im Stack durch Kernreaktionen und dadurch, daß sie durch Streuung aus dem Stackvolumen entfernt werden, führt dazu, daß die Fluenz von  $\Phi_{EQMF}$  mit zunehmender Tiefe der Folie im Stack abnimmt. So beträgt die Fluenz  $\Phi(E_n > 20 \text{ MeV})$  von  $\Phi_{EQMF}$  in der letzten Folie des Stacks UPPN09 noch 75 % der Fluenz von  $\Phi_{EQM}$  und noch 79 % im Falle des Stacks UPPN0B.

Neben der Abnahme der Fluenz ist vor allem auch die Absorption in Abhängigkeit der Neutronenenergie interessant. Abbildung 6.11 zeigt dazu die primären Fluenzen in den Folien des Stacks UPPN09 in Abhängigkeit der Energien  $E_n$  der monoenergetischen Bestrahlungen. Hierbei beträgt die Fluenz  $\Phi$  der einfallenden Neutronen  $\Phi = 1 \text{ cm}^{-2}$  und die Fluenz in der Folie umfaßt die Neutronen im Energieintervall der Breite 0.1 MeV unterhalb von  $E_n$ . Die Abbildung zeigt, daß von den einfallenden Neutronen im Falle der Bestrahlung mit  $E_n = 97.5 \text{ MeV}$  noch 72 % in der letzten Folie des Stacks, im Falle des Schusses mit  $E_n = 22 \text{ MeV}$  jedoch nur noch 60 % ankommen. Diese zunehmende Absorption der Neutronen mit abnehmender Primärenergie ist durch den größeren totalen Absorptionswirkungsquerschnitt im niederenergetischen Bereich zu erklären.

Die genannten prozentualen Abnahmen der Fluenzen  $\Phi(E_n > 20 \text{ MeV})$  von  $\Phi_{EQMF}$  bis zur letzten Folie sind niedriger als die im vorigen Absatz für die monoenergetischen Bestrahlungen angegebenen, da zur Fluenz von  $\Phi_{EQMF}$  zusätzlich die sekundären Teilchen beitragen.

Betrachtet man die in Abbildung 6.11 eingezeichnete Abnahme der Fluenzen mit der Position der Folien im Stack, so fällt für die zwei markierten Folien CU9002 und QU9001 eine Unregelmäßigkeit ins Auge. Im Vergleich zu den anderen Kupferfolien ist die Fluenz in der Kupferfolie CU9002 zu hoch und die primäre Fluenz in der Quarzfolie ist sogar höher als die in den beiden strahlzugewandten Targets vor ihr. Dieses zunächst erstaunliche Ergebnis läßt sich dadurch erklären, daß diese beiden Folien einen Durchmesser von 20 mm haben, alle anderen Folien jedoch einen Durchmesser von nur 19 mm.

Da die Positionen aller Scheiben im geometrischen Setup derart gewählt wurden, daß deren Mittelpunkte auf einer Achse zentriert waren, ragen somit für die zwei größeren Folien Kreisringe von 0.05 mm Breite aus dem Stapel heraus - knapp 10 % des Targetvolumens. Die Erhöhung der Fluenzen in den beiden Folien kommt somit dadurch zustande, daß die 19 mm Scheiben dieser Targets von der durch das Material vor ihnen abgeschwächten primären Fluenz getroffen werden, die Kreisringe jedoch von der nahezu unverminderten Fluenz. Dieser Anteil der primären Fluenz führt zu der gegenüber den davorliegenden Folien erhöhten Fluenz im Targetvolumen.

Für die wenigen Folien mit einem Durchmesser von 20 mm muß dieser Effekt bei der Bestimmung der Fluenz für die Entfaltung berücksichtigt werden. Mit Hilfe der LAHET-Rechnungen ist dies jedoch problemlos möglich.

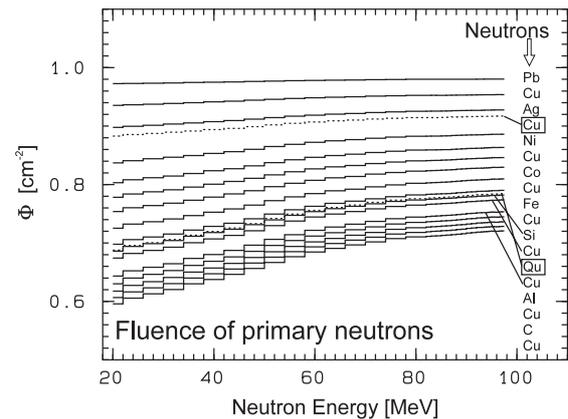


Abbildung 6.11 Primäre Fluenz in den Folien des Experimentes UPPN09 in Abhängigkeit der Einschussenergie der Neutronen der monoenergetischen Bestrahlungen. Die Fluenzlinien folgen von oben nach unten der angegebenen Reihenfolge der Elemente - bis auf die markierten Ausnahmen. Die gestrichelten Linien werden den Folien CU9002 und QU9001 zugeordnet.

### 6.2.3.3 Änderung der quasimonoenergetischen spektralen Fluenz

Durch die in den letzten Kapiteln diskutierten Prozesse, Aufbau der Sekundärteilchenfelder und Absorption der primären Neutronen im Stack, wird  $\Phi_{\text{EQM}}$  der Neutronen aus dem Lithiumtarget verändert, so daß sich die demgegenüber modifizierten  $\Phi_{\text{EQMF}}$  der Neutronen in jeder Folie ergeben.

In Abbildung 6.12 sind die unter Berücksichtigung der Transportrechnungen in den Folien ermittelten  $\Phi_{\text{EQMF}}$  für das Experiment UPPN09 und -0B dargestellt. Berechnet man daraus die ebenfalls in Abbildung 6.12 gezeigten Verhältnisse der Fluenzen  $\Phi_{\text{EQMF}}/\Phi_{\text{EQM}}$  für die Energiegruppen, so sind diese Verhältnisse in Abhängigkeit der Energie nicht konstant. Vielmehr zeigen sie einen charakteristischen Verlauf in Abhängigkeit der Position der Folie im Stack.

Dieser Verlauf läßt sich mit den Ergebnissen der beiden vorangegangenen Kapitel leicht erklären. Zu Beginn des Stacks steigt das Verhältnis  $\Phi_{\text{EQMF}}/\Phi_{\text{EQM}}$  zu niedrigen Energien hin infolge der gebildeten sekundären Neutronen an. Deren Einfluß auf die Änderung der spektralen Fluenz ist nach Kapitel 6.2.3.1 in der Mitte des Stacks maximal. Allerdings ist ein solcher Trend aus den Verhältnissen  $\Phi_{\text{EQMF}}/\Phi_{\text{EQM}}$  nicht unmittelbar zu erkennen, da die mit der Folienposition zunehmende Absorption gerade der niederenergetischen primären Neutronen diesen überlagert. Betrachtet man jedoch im Vergleich dazu mit  $\Phi_{\text{EQMA}}/\Phi_{\text{EQM}}$  wie sich die spektrale Fluenz nur unter Berücksichtigung der Absorption der Primärkomponente verhalten würde, so läßt sich der Anteil der Sekundärteilchen direkt ablesen. Für niedrige Energien ist dieser wie erwartet in Stackmitte am größten.

Zum Ende des Stacks zeigt das Verhältnis  $\Phi_{\text{EQMF}}/\Phi_{\text{EQM}}$  insbesondere für das Experiment UPPN09 eine wannenförmige Struktur für die Energien unterhalb des Peaks. Diese wird im Hochenergetischen durch die Absorption der primären Neutronen, im Niederenergetischen durch die Überlagerung der Prozesse Absorption der primären Neutronen und Sekundärteilchenproduktion geprägt.

Auffällig an den Verhältnissen  $\Phi_{\text{EQMF}}/\Phi_{\text{EQM}}$  in allen Folien des Experimentes UPPN09 ist der Peak bei 91 MeV. Dieser ergibt sich aus der Struktur von  $\Phi_{\text{EQM}}$  im Bereich unterhalb des Hochenergiepeaks. Durch das Minimum, das den Hochenergiepeak vom niederenergetischen Kontinuum trennt, ergibt der in diesem Energiebereich schwach variierende Beitrag der sekundären Teilchen zu  $\Phi_{\text{EQMF}}$  das Maximum.

Der Beitrag der sekundären Teilchen zu  $\Phi_{\text{EQMF}}$ ,  $\Phi_{\text{ESN}}$ , ist im jeweiligen oberen Teil der Abbildung 6.12 ebenfalls gezeigt.  $\Phi_{\text{ESN}}$  steigt für alle Folien unterhalb der Maximalenergie der Neutronen steil an und weist teilweise (CU9003) ein durch das starke Gewicht der sie erzeugenden Neutronen des Hochenergiepeaks leichtes Maximum im Bereich der Peakenergien auf. Unterhalb des Hochenergiepeaks nimmt  $\Phi_{\text{ESN}}$  zu niedrigen Energien infolge der Sekundärteilchenproduktion monoton zu. Durch die bereits in Kapitel 6.2.3.1 diskutierten Mechanismen ist  $\Phi_{\text{ESN}}$  für die niedrigen Energien im Bereich von 20 bis 30 MeV in der Stackmitte maximal, während im hochenergetischen Bereich  $\Phi_{\text{ESN}}$  für die hinteren Folien des Stacks größer ist als für die vorderen Targets.

Die  $\Phi_{\text{ESN}}$  haben für die Energien zwischen 20 und 30 MeV für *beide* Experimente ähnliche Absolutwerte. Trotzdem unterscheiden sich die Verhältnisse  $\Phi_{\text{EQMF}}/\Phi_{\text{EQM}}$  beider Bestrahlungen wegen ihrer unterschiedlichen  $\Phi_{\text{EQM}}$  in diesem Energiebereich erheblich.  $\Phi_{\text{EQM}}$  ist für das Experiment UPPN0B für diese niedrigen Energien etwa einen Faktor drei geringer als das  $\Phi_{\text{EQM}}$  der Bestrahlung UPPN09. Dadurch hat  $\Phi_{\text{ESN}}$  für UPPN0B einen entsprechend größeren relativen Anteil und bewirkt somit ein größeres Verhältnis  $\Phi_{\text{EQMF}}/\Phi_{\text{EQM}}$ .

Der unterhalb des Hochenergiepeaks auftretende Peak bei etwa 90 MeV in der Folie PB9001 wird durch das in Abbildung 6.9 gezeigte Maximum unterhalb des Bereiches der elastischen Streuung verursacht - gewichtet mit den Beiträgen aller monoenergetischen Bestrahlungen, die diese Struktur aufweisen.

Für den Energiebereich des Hochenergiepeaks unterscheidet sich  $\Phi_{\text{EQMA}}/\Phi_{\text{EQM}}$  um weniger als 1% von  $\Phi_{\text{EQMF}}/\Phi_{\text{EQM}}$ . Denn bedingt durch die hohe Fluenz des Hochenergiepeaks haben die Sekundärteilchen in dessen Energiebereich einen vernachlässigbaren Anteil zu  $\Phi_{\text{EQMF}}$ . Dadurch wird die Form des Hochenergiepeaks kaum verändert und die Peakfluenz wird allein durch die Absorption bestimmt.

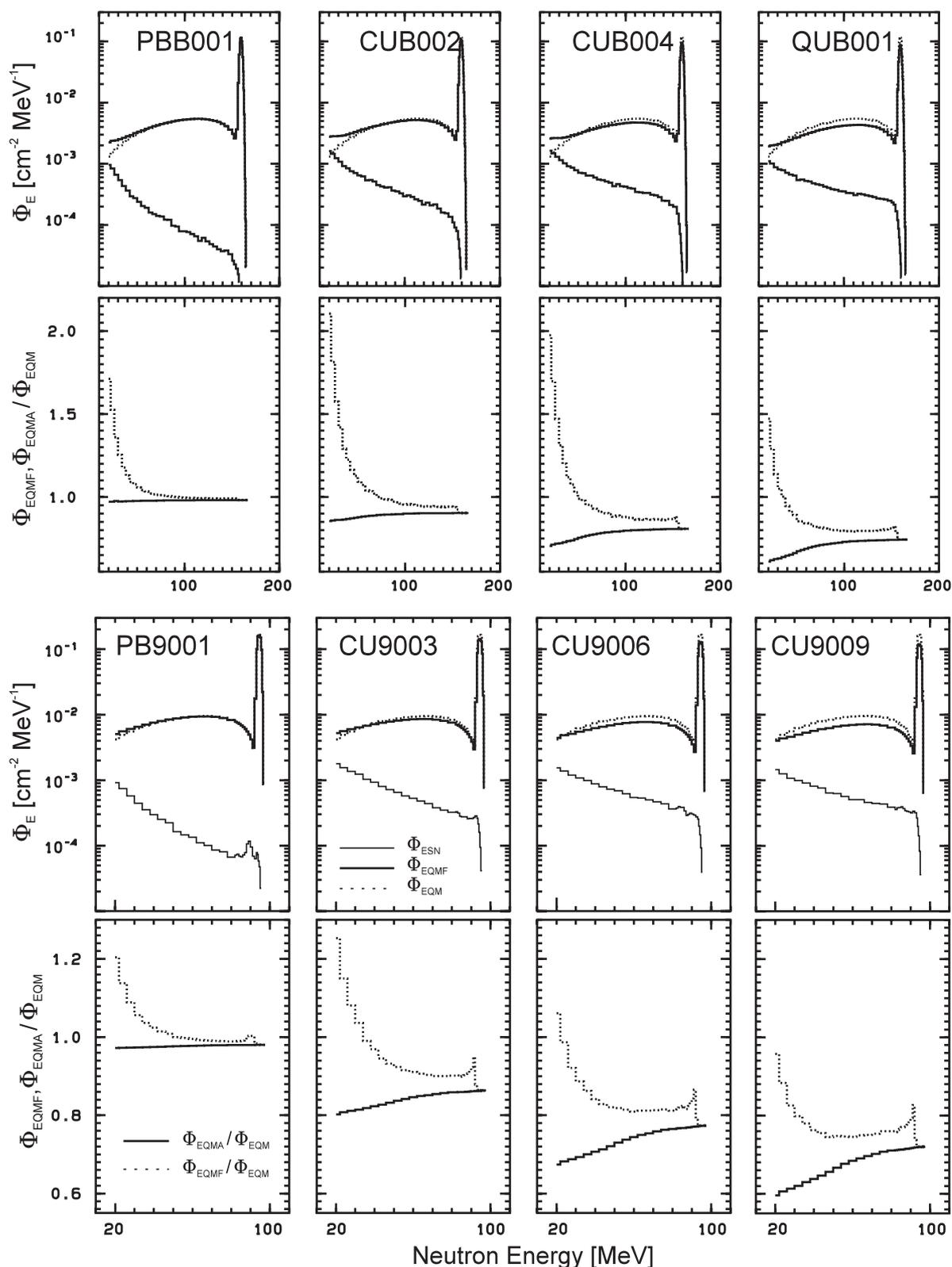


Abbildung 6.12  $\Phi_{EQM}$  der Neutronen aus dem Lithiumtarget,  $\Phi_{EQMF}$  in der angegebenen Folie unter Berücksichtigung der Transportrechnungen, spektrale Fluenz  $\Phi_{ESN}$  nur der sekundären Neutronen, wie sie zu  $\Phi_{EQMF}$  beiträgt. Im oberen Teil des Bildes ist das Experiment UPPN0B, in der unteren Hälfte die Bestrahlung UPPN09 dargestellt. Im jeweiligen unteren Teil sind die Verhältnisse  $\Phi_{EQMF}/\Phi_{EQM}$  und  $\Phi_{EQMA}/\Phi_{EQM}$  in Abhängigkeit der Neutronenenergie gezeigt, wobei  $\Phi_{EQMA}$  die spektrale Fluenz ist, wie sie sich unter alleiniger Berücksichtigung der Absorption ergeben würde.

### 6.2.3.4 Vergleich der theoretischen und experimentellen Responseintegrale

Mit den im letzten Kapitel vorgestellten spektralen Fluenzen  $\Phi_{\text{EQMF}}$  in einer jeden Folie im Stack läßt sich durch Faltung mit den Anregungsfunktionen von Kernreaktionen theoretisch der Verlauf der Responseintegrale über den Stack berechnen. Dessen Vergleich mit der Variation der experimentell gemessenen Aktivitäten erlaubt eine Aussage über die Qualität der LAHET-Modellrechnungen.

Die Wirkungsquerschnitte der Neutronen-induzierten Reaktionen, die für diese Faltungsrechnungen herangezogen wurden, wurden der Arbeit Leyas [LY96] entnommen. Diese sind mit LSA an in Dicktargetexperimenten gemessene Responseintegrale angepaßte Anregungsfunktionen.

Die derart erstellten Anregungsfunktionen sind die in unserer Arbeitsgruppe vorliegenden besten Schätzungen der wahren Wirkungsquerschnitte. Die im folgenden verwendeten Reaktionen stellen eine Palette verschiedenartiger, typischer Verläufe von Anregungsfunktionen zur Verfügung. Trotzdem bewirken Abweichungen von den wahren Verläufen Fehler in den berechneten Responseintegralen, deren Größe hier nicht quantifiziert werden kann. Diese zusätzliche Unsicherheit muß bei der folgenden Diskussion beachtet werden.

Die Abnahme der Responseintegrale mit der Position im Stack wurde experimentell anhand der Reaktionen am Monitorelement Kupfer gemessen (Kapitel 4.2.1 und 5.2.3.2.2), von denen im folgenden zum Vergleich mit den berechneten die Reaktionen zu  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{52,54}\text{Mn}$ ,  $^{56,57,58}\text{Co}$  herangezogen werden.

Abbildung 6.13 zeigt die theoretischen und experimentellen Verläufe der Responseintegrale normiert auf die erste Kupferfolie in Abhängigkeit der Position der Targets im Stack. Wie der linke Teil der Abbildung zeigt, stimmen für alle Produkte die berechneten Responseintegrale innerhalb von 1 % überein. Die unterschiedlichen Schwellenenergien der Anregungsfunktionen, die von 25 MeV ( $^{58}\text{Co}$ ) bis hin zu 75 MeV ( $^{51}\text{Cr}$ ) reichen, bewirken also keinen davon abhängigen Verlauf der Responseintegrale.

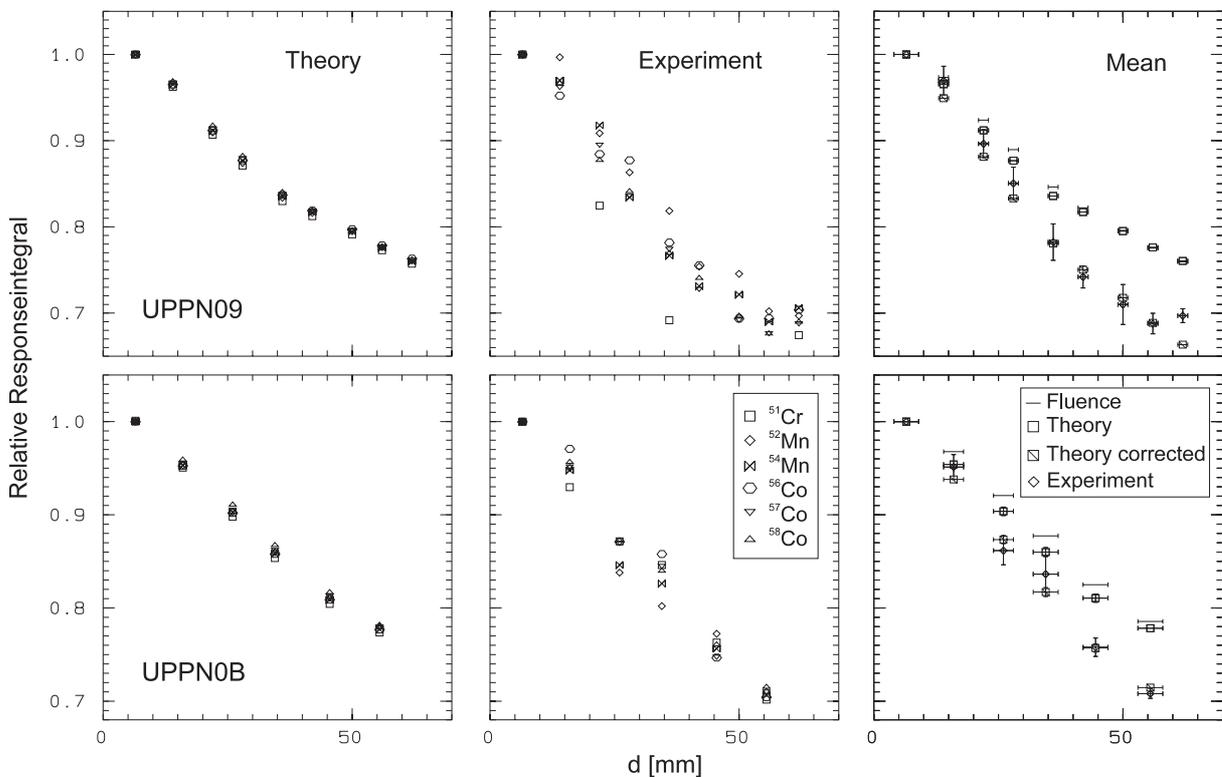


Abbildung 6.13 Theoretische Responseintegrale für die Produkte  $^{51}\text{Cr}$ ,  $^{52,54}\text{Mn}$ ,  $^{56,57,58}\text{Co}$  aus Kupfer ermittelt mit den mit LAHET berechneten spektralen Fluenzen (links), experimentell gemessene Responseintegrale (ohne Unsicherheiten, Mitte) und Mittelwerte der theoretischen und experimentellen Responseintegrale, Fluenzen  $\Phi(E_n > 20\text{MeV})$  sowie korrigierte theoretische Responseintegrale (rechts). Die Daten sind über der Position  $d$  der Folien im Stack aufgetragen. Im Falle der Theorie sind die Symbole nicht voneinander zu unterscheiden.

Die Verläufe der experimentell gemessenen Responseintegrale (Abbildung 6.13 Mitte) fallen ebenfalls für die sechs Reaktionen innerhalb der relativen Unsicherheiten der Meßergebnisse zusammen, die produktabhängig zwischen 0.5 % und 10 % liegen. Dies zeigt sich insbesondere für die Produkte  $^{57,58}\text{Co}$  mit den geringsten relativen Unsicherheiten von 2 % beziehungsweise  $< 1\%$ , deren Responseintegrale innerhalb dieser Unsicherheiten gut übereinstimmen. Für den folgenden Vergleich der experimentellen Responseintegrale mit den theoretischen werden daher deren Mittelwerte für eine Kupferfolie gebildet.

Diese Mittelwerte sind in Abbildung 6.13 (rechts) gezeigt. Die theoretischen wie auch die experimentellen Verläufe sind auf die Werte in der ersten Kupferfolie normiert, so daß sie für diese Folie exakt übereinstimmen. Für die weiteren Folien im Stack divergieren jedoch für beide Experimente die theoretischen und experimentellen Abhängigkeiten sukzessive auseinander. Die experimentellen Daten liegen unterhalb der theoretischen Werte, die Diskrepanz zwischen ihnen vergrößert sich mit der Position der Folie im Stapel und beträgt für beide Bestrahlungen für die letzte Kupferfolie etwa 10 %.

Die Rechnungen bieten vielfältige Ursachen für diese Abweichungen an: die Eingangsdaten für das bei den LAHET-Rechnungen benutzte physikalische Modell, die elastischen Streuquerschnitte, Ungenauigkeiten im geometrischen Setup sowie die Anregungsfunktionen der Reaktionen. Allerdings ist es unwahrscheinlich, daß alle sechs Anregungsfunktionen derartig systematisch vom wahren Verlauf abweichen, daß alle sechs Verläufe gleichermaßen falsch berechnet werden.

Eine plausible Interpretation dieser zunehmenden Abweichung der experimentellen von den theoretischen Responseintegralen ist die falsche Berechnung der Absorption der Neutronen im Stack. Ein solcher Fehler ist am Anfang des Stacks kaum merklich, er potenziert sich aber zum Stapelende und führt dort zu einer signifikanten Diskrepanz. Nimmt man an, daß die Absorption für die Neutronen *aller* Energien gleich falsch berechnet werden, so ergibt eine in den Folien um jeweils einen Faktor 0.9915 verminderte Fluenz  $\Phi(E_n > 20 \text{ MeV})$  die in der Abbildung dargestellten korrigierten theoretischen Werte, mit denen der experimentelle Verlauf gut wiedergegeben wird.

Der von LAHET ungenügend berechnete Verlauf der Responseintegrale läßt sich also mit falschen in die Rechnungen eingehenden Reaktionswirkungsquerschnitten erklären, die tatsächlich nicht ausreichend bekannt sind [GL98A]. So wird in der Arbeit von Gloris [GL98A] am Beispiel von Wismut gezeigt, daß die Reaktionswirkungsquerschnitte von LAHET/ISABEL - auch der in dieser Arbeit benutzte Ansatz - um etwa 20 % unterhalb denen der empirischen Relation von Letaw [LE83, PE89] liegen. Die Korrektheit des Ansatzes von Letaw vorausgesetzt, ergibt diese Tatsache gerade die beobachtete Unterschätzung der nuklearen Absorption.

Der Faktor 0.9915 entspricht einer Abweichung zwischen benutztem und wahren Reaktionswirkungsquerschnitt von  $\sim 200 \text{ mb}$ . Bei Reaktionswirkungsquerschnitten größer als 1 b [PE89] ergibt dies eine Diskrepanz von kleiner als 20 %, die somit in Einklang mit dem obigen Beispiel anhand von Wismut steht. Für die leichteren Elemente (C, O, Al, Si) erscheint diese Abweichung infolge der kleineren Reaktionswirkungsquerschnitte etwas zu hoch.

Die Korrektur der theoretischen Werte mit einem konstanten Faktor, der sich über den Stackverlauf potenziert, ist prinzipiell auch ein zu einfacher Ansatz, obwohl er für die beiden Stacks gute Ergebnisse liefert. Denn ein erhöhter Reaktionswirkungsquerschnitt bewirkt auch eine größere Produktion von Sekundärteilchen, die wiederum verstärkt absorbiert werden. Zudem wird sich der Reaktionswirkungsquerschnitt im allgemeinen abhängig von der Neutronenenergie ändern. Es ist also zu erwarten, daß sowohl die Absorption der primären Neutronen als auch die Fluenzen sekundärer Teilchen beeinflusst werden. Die Quantifizierung dieser Effekte durch veränderte Reaktionswirkungsquerschnitte muß durch erneute Transportrechnungen erfolgen.

Die Fluenz  $\Phi(E_n > 20 \text{ MeV})$  stimmt mit den Mittelwerten der berechneten Responseintegrale für alle Folien innerhalb von 3 % überein. Im Rahmen dieser Ungenauigkeit geben die gemessenen Responseintegrale also die Verminderung der Fluenz  $\Phi(E_n > 20 \text{ MeV})$  wieder. Die in Kapitel 5.2.3.2.1 gegebene Interpretation der Responseintegralverläufe, daß die Abnahme der Responseintegrale der Verminderung der Fluenz der Neutronen entspricht, wird also hier durch die theoretischen Rechnungen bestätigt.

## 6.2.4 Zusammenfassende Betrachtung

Die in dieser Arbeit durchgeführten Transportrechnungen der Neutronen durch den Stackaufbau zeigen prinzipiell, wie sich die Sekundärteilchenfelder aufbauen und wie sich die Fluenzen primärer Teilchen beim Stackdurchgang verhalten. Mit diesen Rechnungen ist es daher möglich, die Veränderung der spektralen Fluenz mit der Position der Folie im Stack zu verfolgen und diese für jede Folie individuell zu berechnen.

Dabei zeigte sich, daß die sekundären Neutronen - abhängig von der spektralen Fluenz der primären Neutronen - für Einschußenergien größer als  $\sim 100$  MeV eine signifikante Veränderung der relativen spektralen Fluenz bewirken. Zur Erstellung für die Entfaltung nötiger, akkurater spektraler Fluenzen der Neutronen für die einzelnen Folien sind Transportrechnungen daher unumgänglich. Die relative Änderung der spektralen Fluenz durch die sekundären Neutronen hängt dabei empfindlich von der spektralen Fluenz der primären Neutronen ab. Daher muß der Bestimmung der primären spektralen Fluenz erste Priorität für die folgenden Experimente und Untersuchungen eingeräumt werden.

Trotz der aufwendigen Berechnung zeigte sich, daß durch ungenügend bekannte Reaktionswirkungsquerschnitte, die in das benutzte physikalische Modell eingehen, die experimentellen Daten nur innerhalb von etwa 10 % wiedergegeben werden. Eine experimentelle Bestimmung der Abnahme der Fluenzen über den Stack mit Hilfe der Kupfermonitorscheiben oder mit den TFBCs ist daher weiterhin unumgänglich.

LAHET berechnet den Transport der Neutronen nur hinunter bis zu Energien von 20 MeV. Für Reaktionen mit Schwellenenergien unterhalb von 20 MeV sind daher weitere Rechnungen nötig, wozu an das Programmsystem LAHET der Code MCNP [BR97A] angekoppelt werden muß. Dies konnte in dieser Arbeit aus Zeitgründen nicht mehr durchgeführt werden. Allerdings ist davon nur ein geringer Anteil der Reaktionen betroffen. Zum anderen liegen bisher keine Grundlagen zur dafür nötigen Bestimmung von  $\Phi_{\text{EQM}}$  unterhalb von 20 MeV vor.

## 7 Die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie

Ein Forschungsschwerpunkt unserer Arbeitsgruppe ist die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie. Daher wurden in dieser Arbeit vor allem Messungen von Wirkungsquerschnitten Protonen-induzierter Reaktionen vorgenommen, die die Anregungsfunktionen solcher Restkerne erstellen und vervollständigen, die als kosmogene Nuklide von Bedeutung sind (insbesondere  $^{44}\text{Ti}$ ,  $^{55}\text{Fe}$  und stabile und langlebige Krypton-Isotope). Zusammen mit den Wirkungsquerschnitten unserer Gruppe (zum Beispiel [SC95, MI96B, SU97]) liegt damit eine umfassende Datenbasis vor, mit der zuverlässig solche Modellrechnungen durchgeführt werden können.

Für die Modellierung von Produktionsraten in extraterrestrischer Materie werden in gleichem Maße auch die Anregungsfunktionen der Neutronen-induzierten Reaktionen benötigt. Da die Qualität dieser Daten für die Genauigkeit solcher Modellrechnungen entscheidend ist, wurden bereits in vorangegangenen Arbeiten erfolgreich Methoden [LU93, LY96] entwickelt, diese Wirkungsquerschnitte *indirekt* mit Hilfe von Dicktargetexperimenten (Kapitel 3.2) physikalisch sinnvoll zu erstellen. Die Validierung der mit der Methode Leyas [LY96] erstellten und auch in dieser Arbeit benutzten Wirkungsquerschnitte der Neutronen-induzierten Reaktionen ergibt, daß mit ihnen und den Daten zur Protonen-induzierten Produktion die Berechnung der in diesen Dicktargetexperimenten gemessenen Produktionsraten innerhalb einer Unsicherheit von 9 % erfolgt.

Gegenüber diesem Verfahren nutzt die Entfaltung der Anregungsfunktionen Neutronen-induzierter Reaktionen auf der Grundlage der Experimente dieser Arbeit *direkt* Bestrahlungen mit Neutronen. Mit den Ergebnissen dieser Bestrahlungen werden somit neue, gegenüber der Methode Leyas [LY96] verbesserte Daten vorliegen. Es liegt jedoch in der Natur dieser experimentellen Methode, daß bis zu den vollständigen Ergebnissen hierzu noch einige Jahre Arbeit erforderlich sein werden.

Mit diesen Wirkungsquerschnitten der Neutronen-induzierten Reaktionen als Eingangsdaten wird dann eine zuverlässige und genaue Durchführung von Modellrechnungen möglich sein. Dies wird nicht nur die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie betreffen, sondern vor allem auch die sich heute noch in ihren Anfangsphasen befindlichen Untersuchungen zur Produktion kosmogener Nuklide in der Atmosphäre [OB91] und für die „in situ“-Produktion von Restkernen [LA88, FI93], etwa in Oberflächengestein. Für die zwei letzteren genannten Fragestellungen spielt die Produktion durch Neutronen-induzierte Reaktionen eine im Vergleich zur Erzeugung der kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie noch entscheidendere Rolle.

Trotz der Bemühungen, die Qualität der Anregungsfunktionen zur Durchführung von Modellrechnungen immer weiter zu verbessern, haben die Wirkungsquerschnitte zur Neutronen- und Protonen-induzierten Produktion auf der Basis der oben angesprochenen Messungen und Verfahren [LY96] für viele Nuklide bereits eine derartige Qualität, daß aussagekräftige Rechnungen zur Produktion kosmogener Nuklide durchgeführt werden können. Auf dieser Grundlage werden im folgenden eine Reihe aktueller Fragestellungen zur Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie behandelt.

Nach einem einleitenden Kapitel (Kapitel 7.1) zur Frage der Normierung der Modellrechnungen in Meteoroiden wird auf die Produktion kurzlebiger Nuklide (Kapitel 7.2),  $^{44}\text{Ti}$  (Kapitel 7.3) und kosmogener Krypton-Isotope (Kapitel 7.4) in Meteoroiden sowie auf die Erzeugung kosmogener Nuklide in Mondproben (Kapitel 7.5) eingegangen. Diese Kapitel beinhalten die Produktion kosmogener Nuklide ausschließlich durch die GCR, die Frage des langzeitgemittelten SCR-Spektrums wird in Kapitel 7.6 behandelt. Die einzelnen Kapitel behandeln ganz unterschiedliche Gesichtspunkte, ihnen liegt jedoch das gemeinsame Ziel zugrunde, die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie besser zu verstehen

## 7.1 Die Abhängigkeit der Produktionsraten vom Modulationsparameter

Für einen sinnvollen Vergleich von in Meteoriten gemessenen Produktionsraten mit denen der Simulationsrechnungen muß die spektrale Flußdichte  $\varphi_E$  der auf den Meteoroiden eingefallenen Teilchen mit der für die Rechnungen benutzten  $\varphi_E$  übereinstimmen. Im Falle der spektralen Flußdichte der GCR muß also die Flußdichte  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  der Protonen oder damit gleichbedeutend der Modulationsparameter  $M$  (Kapitel 1.3.2) als Eingabe für die Rechnung festgelegt werden.

Information über die Flußdichte der GCR wird entsprechend der Aktivierungsgleichung (3.2) von der Aktivität eines durch die GCR erzeugten Radionuklides über einen Zeitraum von bis zu etwa acht Halbwertszeiten gespeichert. Da die Flußdichte im allgemeinen zeitlich nicht konstant ist, muß  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  nuklidspezifisch gewählt werden, abhängig vom Zeitraum, über den die Aktivierungsgleichung die Flußdichte mittelt. Wie diese Wahl in dieser Arbeit bei der Berechnung der Produktionsraten erfolgte, wird im folgenden vorgestellt - unterschieden nach langlebigen ( $T_{1/2} \geq \text{ka}$ ) und stabilen Nukliden sowie nach kurzlebigen Radionukliden ( $T_{1/2} \lesssim 100 \text{ a}$ ).

### 7.1.1 Langlebige und stabile Radionuklide

In Meteoriten gemessene Aktivitäten langlebiger Radionuklide - beispielsweise  $^{26}\text{Al}$  ( $T_{1/2} = 0.716 \text{ Ma}$ ),  $^{10}\text{Be}$  ( $T_{1/2} = 1.6 \text{ Ma}$ ) oder  $^{36}\text{Cl}$  ( $T_{1/2} = 0.3 \text{ Ma}$ ) - speichern Informationen über die Flußdichte  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  in den Orbits der Meteoroiden über derart lange Zeiträume, über die man mit anderen Methoden keinen Zugang hat. Mit Hilfe der Modellrechnungen wird daher mit den in Meteoriten gemessenen Produktionsraten die Flußdichte  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  bestimmt; die Produktionsraten der langlebigen Radionuklide fungieren somit *selbst* als Monitor für die langzeitgemittelte Flußdichte der GCR in den Meteoroidenorbits.

Diese Flußdichtebestimmung wurde in der Arbeit Leyas [LY96] vorgenommen. Hierzu wurden die im gut untersuchten L-Chondrit Knyahinya gemessenen Produktionsraten herangezogen. Dessen präatmosphärischer Radius  $R = 45 \text{ cm}$  ist durch umfangreiche Arbeiten [GR90A] gut bestimmt und liegt vorteilhaft in einem Bereich, in dem geringe Unsicherheiten im Radius sich nur wenig auf die Produktionsraten auswirken. Mit einem Bestrahlungsalter von etwa  $40 \text{ Ma}$  [GR90A] sind außerdem die gemessenen Aktivitäten in Sättigung und entsprechen den Produktionsraten.

Berechnet man nun die Produktionsraten  $P$  für einen Radius von  $R = 45 \text{ cm}$  in Abhängigkeit des Modulationsparameters  $M$ , so wird der über die Halbwertszeit des benutzten Nuklides gemittelte Modulationsparameter durch die Übereinstimmung der berechneten Produktionsraten  $P = P(M)$  mit den experimentellen Daten festgelegt. Dies wurde in der Arbeit Leyas [LY96] anhand der Werte des Nuklids  $^{26}\text{Al}$  durchgeführt und ergab einen Modulationsparameter von  $M = 620 \text{ MeV}$  gleichbedeutend mit einer Protonenflußdichte der GCR im Meteoroidenorbit von  $\varphi(E > 10 \text{ MeV}) = 2.62 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .

Die Berechnung der Produktionsraten nach Gleichung (1.1) erfolgt praktisch mit spektralen Flußdichten, die auf  $\varphi = 1 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ , ein einfallendes Proton, normiert sind. Daher ergibt sich der Faktor  $\varphi_{\text{GCR}}$  zur Normierung der mit  $\varphi = 1 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  berechneten Produktionsraten auf die im Meteoroidenorbit erzeugten Aktivitäten zu  $\varphi_{\text{GCR}} = 2.62 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1} \cdot 1.552 = 4.06 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ . Der Faktor 1.552 berücksichtigt dabei die zusätzliche Produktion durch die  $\alpha$ -Teilchen, die zu 12 % in der GCR enthalten sind.

Die nächsten Abschnitten gezeigten größenabhängigen Produktionsraten in Meteoroiden wurden mit  $\varphi_{\text{GCR}} = 4.06 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  und  $M = 650 \text{ MeV}$  berechnet. Dieser benutzte Modulationsparameter  $M = 650 \text{ MeV}$  stimmt nicht exakt mit dem aus den Daten Knyahinyas extrahierten  $M$  überein, da für die größenabhängige Simulation der Produktionsraten *nur* für  $M = 650 \text{ MeV}$  spektrale Teilchenflußdichten für Meteoroiden elf verschiedener Radien zwischen  $5 \text{ cm}$  und  $120 \text{ cm}$  zur Verfügung standen [LA94]. Leya zeigte jedoch, daß diese Berechnung für fast alle langlebigen und stabilen Nuklide eine Übereinstimmung von Theorie und Experiment innerhalb der Unsicherheiten liefert [LY96].

## 7.1.2 Kurzlebige Radionuklide

Die GCR-Produktionsraten hängen von der GCR-Flußdichte  $\phi$  ab, die ihrerseits *zeitlich* mit der Sonnenaktivität sowie *räumlich* mit dem Abstand von der Sonne variiert. Die räumliche Änderung wiederum unterteilt sich zum einen in die Zunahme der Flußdichte mit wachsendem radialem Abstand von der Sonne; dieser positive Gradient hängt von der Phase im solaren Zyklus (siehe unten) ab [MK82, LO93] und beträgt im Mittel 2-3 %/A.U. [MK87]. Demgegenüber ist die Änderung von  $\phi$  mit der Breite größer und das Vorzeichen dieses Gradienten hängt außerdem von der magnetischen Polarität der Sonne ab; beispielsweise wurde mit Pioneer 11 zwischen 1985 und 1988 ein Gradient von -0.2 bis -2.2 %/Grad für  $E > 70$  MeV [LO93] gemessen.

Für die relevanten Aktivierungszeiträume der kurzlebigen Nuklide  $^{57}\text{Co}$  ( $T_{1/2} = 271.3$  d),  $^{54}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} = 312.2$  d) und  $^{22}\text{Na}$  ( $T_{1/2} = 2.602$  a) vor dem Fall der Meteoroiden liegen zumeist Informationen über den zeitlichen Verlauf der GCR-Flußdichte  $\phi = \phi(t)$  für 1 A.U. vor, mit dem die *zeitliche* Variation der Produktionsraten dieser kurzlebigen Nuklide berechnet wird. Der Vergleich der unter Berücksichtigung der zeitlichen Änderung von  $\phi$  für 1 A.U. berechneten Produktionsraten mit denen in Meteoriten, deren Orbits im Mittel bei zwei bis drei A.U. liegen, läßt wiederum Rückschlüsse über die räumliche Abhängigkeit von  $\phi$  zu. Informationen über die räumliche Änderung von  $\phi$  zu gewinnen, ist daher die Hauptmotivation, kurzlebige kosmogene Nuklide in Meteoriten zu messen.

Die Messungen für das zeitliche Verhalten  $\phi = \phi(t)$  greifen auf die Variation der Sonnenaktivität zurück, die  $\phi$  direkt beeinflusst. Die Sonnenaktivität wird auf der Erde vor allem durch zwei Methoden verfolgt: durch das Beobachten von Sonnenflecken auf der Sonne und durch Neutronenmonitore auf der Erde. Die Sonnenflecken haben ihre Ursache im Magnetfeld auf der Oberfläche der Sonne und erscheinen dem Betrachter infolge ihrer gegenüber der restlichen Oberfläche um etwa 3000 K geringeren Temperatur als dunkle Gebiete. Diese Bereiche werden nach einer standardisierten Methode registriert und in der sogenannten Sonnenfleckenanzahl SP festgehalten. Seit 1700 liegen jährliche Sonnenfleckenanzahlen vor und seit 1848 wird SP täglich gemessen.

Die Neutronenmonitore auf der Erde messen die sekundären Teilchen, die von der GCR bei ihrer Wechselwirkung mit dem Atmosphärenmaterial erzeugt werden. Diese Meßwerte sind gegenüber der Sonnenfleckenanzahl umgekehrt korreliert. Denn das mit zunehmender Sonnenfleckenanzahl einhergehende größere Magnetfeld schirmt die Erde gerade von der kosmischen Strahlung ab. Im folgenden werden die Daten von Climax benutzt, dem von der Universität von Chicago betriebenen Colorado-Neutronenmonitor, der kontinuierlich seit 1953 Meßwerte aufnimmt.

Die Messungen mit diesen zwei Methoden zeigen, daß die Sonnenaktivität periodischen Schwankung unterliegt. So variiert die Sonnenfleckenanzahl mit einer Periode von elf Jahren, dem Schwabe Zyklus. Eine solche Elf-Jahres Periode wird auch als solarer Zyklus bezeichnet und fortlaufend numeriert, so daß wir uns heute im solaren Zyklus 23 befinden, der 1998 begonnen hat. Der elfjährige Schwabe Zyklus wiederum wird mit einer Periode von 80 bis 90 Jahren amplitudenmoduliert vom sogenannten Gleissberg Zyklus [GL67, CO74].

Darüber hinaus existierte zwischen 1645 und 1700 eine Periode sehr geringer solarer Aktivität, das sogenannte Maunder-Minimum [ED76]. Dieses zeichnet sich durch das völlige Fehlen von Sonnenflecken aus und Untersuchungen weisen darauf hin, daß der Modulationsparameter für diesen Zeitraum bei nur  $M = 100$  MeV lag [CA80]. Es wird diskutiert, ob dieses Minimum Teil einer periodischen Schwankung der Sonnenaktivität mit einer Periode von etwa 1000 a ist [ED76].

### 7.1.2.1 Die Nuklide $^{57}\text{Co}$ , $^{54}\text{Mn}$ und $^{22}\text{Na}$

Für die Messungen der Neutronenmonitore auf der Erde muß ein Zusammenhang mit der Flußdichte der GCR im Weltraum hergestellt werden. Denn wie dies oben im Falle der langlebigen Nuklide gezeigt wurde, wird diese gerade für die richtige Normierung der Rechnungen benötigt.

Für diese Korrelation wird auf die von Bhandari et al. [BH89] angegebene Gleichung

$$\varphi(E > 1 \text{ GeV}) = 8.13 \cdot N_m - 5.845 \tag{7.1}$$

zurückgegriffen, wobei  $N_m$  die mittlere jährliche Neutronenmonitorrate des Climax ist, normiert auf die Zählrate des Jahres 1965 ( $4291.7 \pm 1$ ). Nach [BH94A] kann Gleichung (7.1) jedoch auch mit den monatlichen Zählraten  $N_m$  benutzt werden. Die Flußdichte  $\varphi(E > 1 \text{ GeV})$  gilt für den Abstand von 1 A.U. und ist dem Modulationsparameter  $M$  und auch der Flußdichte  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  eineindeutig zugeordnet. So wird mit der mit den Modellrechnungen ermittelten Abhängigkeit der Produktionsrate eines Nuklides  $i$  von der Flußdichte  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$ ,  $P_i = P_i(\varphi(E > 10 \text{ MeV}))$ , mit der Aktivierungsgleichung

$$P_i(t_{\text{Fall}}) = \sum_k P_{i,k}(\varphi_k(E > 10 \text{ MeV})) \cdot e^{-\lambda_i(t_{\text{Fall}} - t_{E,k})} (1 - e^{-\lambda_i(t_{E,k} - t_{B,k})}) \tag{7.2}$$

die Produktionsrate  $P_i(t_{\text{Fall}})$  zum Zeitpunkt des Falles  $t_{\text{Fall}}$  eines Meteoriten berechnet. Hierbei wird für den  $k$ -ten Zeitraum  $t_{E,k} - t_{B,k}$  der Aktivierung die Produktionsrate  $P_{i,k}$  konstant gesetzt.  $t_{E,k} - t_{B,k}$  wurde für alle drei Nuklide zu einem Monat gewählt; für die kürzerlebigen Nuklide  $^{57}\text{Co}$  und  $^{54}\text{Mn}$  ergibt die Berechnung mit  $t_{E,k} - t_{B,k} = 1 \text{ d}$  Unterschiede von nur maximal 1% dazu.

Die Berechnung nach Gleichung (7.2) wurde in das Programm INTEGRSP umgesetzt. Dieses benötigt die Produktionsraten eines Nuklides ( $R = 40 \text{ cm}$ ) in Abhängigkeit der vier Modulationsparameter  $M = 650, 620, 450$  und  $300 \text{ MeV}$ , an die für eine vorzugebende relative Tiefe ein Fit mit einem Polynom zweiten Grades durchgeführt wird. Weitere Eingaben sind die Datei MOD.DAT, die den Modulationsparametern  $M$  Flußdichten  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  zuordnet, die Climaxmonitorraten  $N_m$  (CLIMAX.TAB) sowie für  $^{44}\text{Ti}$  (Kapitel 7.1.2.2) die Sonnenfleckenzahlen  $SP$  (YEARLY.PLT).

Als Beispiel für eine solche Aktivierungsrechnung wird im folgenden die Produktion von  $^{22}\text{Na}$  in L-Chondriten gezeigt. In Abbildung 7.1 ist zunächst die in Gleichung (7.2) eingehende Abhängigkeit der  $^{22}\text{Na}$ -Produktionsrate von der Flußdichte  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  für einen Meteoroiden eines Radius von  $40 \text{ cm}$  eingezeichnet. An die vier berechneten Stützstellen wurde der Zusammenhang mit einem Polynom zweiten Grades gefittet.

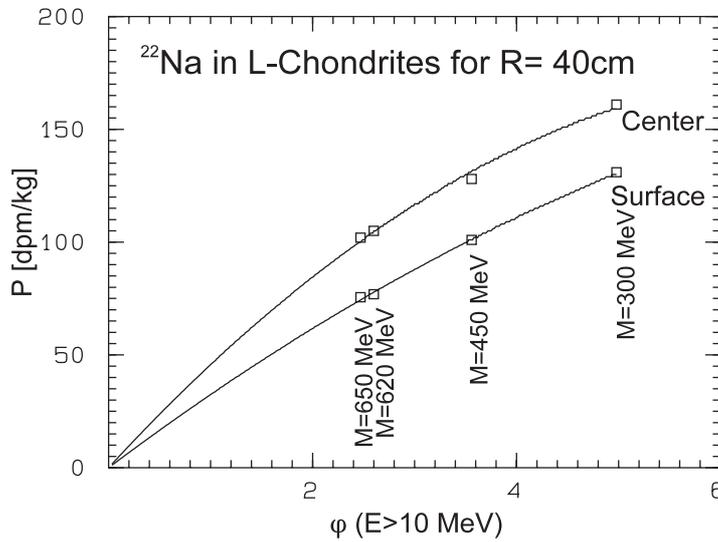


Abbildung 7.1 Produktionsrate für  $^{22}\text{Na}$  in L-Chondriten für  $R = 40 \text{ cm}$  in Abhängigkeit der GCR-Protonenflußdichte  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$ .

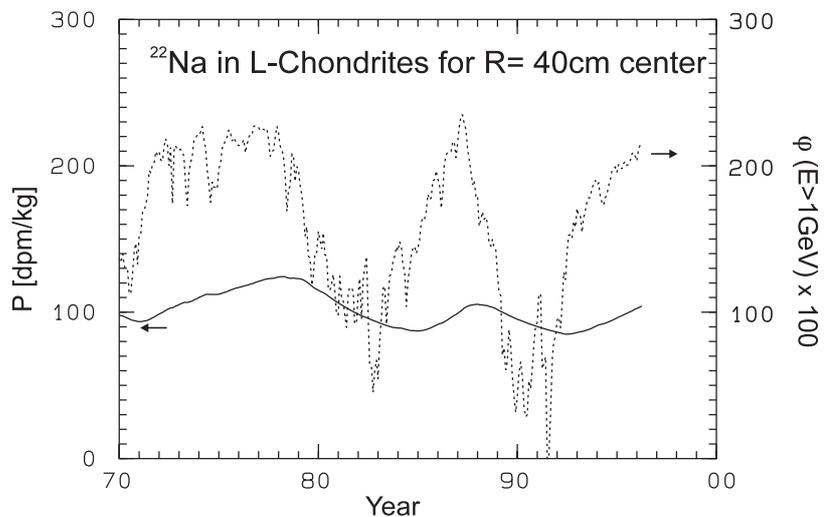


Abbildung 7.2 Produktionsrate für  $^{22}\text{Na}$  in L-Chondriten ( $R = 40 \text{ cm}$ , Zentrum) und die GCR-Protonenflußdichte  $\varphi(E > 1 \text{ GeV})$  in Abhängigkeit des Falljahres im 20. Jahrhundert.

Die für die Tiefen im Zentrum und an der Oberfläche exemplarisch gezeigten Verläufe unterscheiden sich, was sich nach Gleichung (7.2) auf die Aktivierungsberechnung auswirkt. Prinzipiell müßte daher die Aktivierungsberechnung mit dem Ziel eines Vergleiches mit experimentellen Produktionsraten abhängig von der Probentiefe durchgeführt werden. Die Abweichungen der relativen Verläufe der Produktionsraten in Abhängigkeit des Fallzeitpunktes zwischen der Zentrums- und der Oberflächenposition belaufen sich jedoch auf nur maximal 2 %. Da dies auch für die anderen Tiefen gilt und die Probentiefe im Meteoroiden zudem häufig nur abgeschätzt werden kann, wird die zusätzliche Unsicherheit dadurch vernachlässigt.

Die maximalen Flußdichten  $\varphi(E > 1 \text{ GeV})$  ergeben sich nach Gleichung (7.1) für den in Abbildung 7.2 gezeigten Zeitraum zu etwa  $\varphi(E > 1 \text{ GeV}) = 2.3 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ , die minimalen reichen bis  $\varphi(E > 1 \text{ GeV}) = 0 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  hinunter. Der in Abbildung 7.1 gezeigte Zusammenhang  $P = P(\varphi)$  wurde dementsprechend zum einen bis zu  $M = 400 \text{ MeV}$  extrapoliert. Für die Extrapolation zu hohen Modulationsparametern wurde als obere Grenze  $M = 900 \text{ MeV}$  ( $\varphi(E > 1 \text{ GeV}) = 1.27 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ) gewählt. Dieser Wert ist nach Castagnoli und Lal [CA80] der maximale Modulationsparameter für die Zeiträume hoher solarer Aktivität; die darunter berechneten Flußdichten wurden  $M = 900 \text{ MeV}$  gleichgesetzt.

Für die Zentrumsposition zeigt Abbildung 7.2 den nach Gleichung (7.2) berechneten Verlauf der  $^{22}\text{Na}$ -Produktionsraten  $P(^{22}\text{Na})$  in Abhängigkeit des Fallzeitpunktes zusammen mit den Flußdichten  $\varphi(E > 1 \text{ GeV})$  nach Gleichung (7.1). Die  $\varphi(E > 1 \text{ GeV})$  zeigen die oben angesprochene Elf-Jahres Periodizität des Schwabe Zyklus, die sich mit einer Phasenverschiebung von etwa zwei Jahren auch in  $P(^{22}\text{Na})$  widerspiegelt. Bhandari et al. [BH94A, BH94B] führten ebenfalls Aktivierungsrechnungen auf der Grundlage von Gleichung (7.1) durch und bekommen ähnliche Änderungen für  $P(^{22}\text{Na})$ . Ihr Vergleich mit Meßwerten von Meteoriten zeigt, daß die experimentelle und theoretische zeitliche Variation der  $P(^{22}\text{Na})$  für den Fallzeitraum zwischen 1965 und 1990 in vernünftigen Maße übereinstimmt.

Die Unsicherheit einer solchen Aktivierungsrechnung ergibt sich zum einen aus der 10 %-igen Unsicherheit von  $\varphi(E > 1 \text{ GeV})$  nach Gleichung (7.1) [PO79]. Diese überträgt sich nach Abbildung 7.1 in gleicher Größenordnung auf die Unsicherheit der Produktionsraten. Somit wird der relative Verlauf der Produktionsraten in Abhängigkeit des Fallzeitpunktes auch nur mit einer Unsicherheit von 10 % berechnet. Zusammen mit der Unsicherheit der Produktionsrate selbst von 9 % [LY96] ergibt sich eine Gesamtunsicherheit für die Produktionsrate aus der Aktivierungsrechnung von 13 %.

Wie schon im vorangegangenen Kapitel erwähnt wurde liegen zur Berechnung der Produktionsraten in Abhängigkeit des Modulationsparameters  $M$  nur für Meteoroiden mit  $R = 40 \text{ cm}$  mit Monte-Carlo-Methoden simulierte spektrale Teilchenflußdichten vor. Die in Abbildung 7.2 gezeigten Aktivierungsrechnungen für  $P_i = P_i(\varphi(E > 10 \text{ MeV}), R = 40 \text{ cm})$  müssen daher nun auf andere Radien übertragen werden. Betrachtet man dazu die auf  $\varphi(E > 10 \text{ MeV}) = 1 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  normierten Produktionsraten, so nimmt mit zunehmenden  $M$  auch die Produktionsrate zu, was maßgeblich durch die größeren Produktionsraten der sekundären Protonen und Neutronen verursacht wird. Denn der höhere Modulationsparameter  $M$  bewirkt eine größere mittlere Energie der spektralen Flußdichte, wodurch mehr sekundäre Teilchen im Meteoroiden produziert werden.

Die Abhängigkeit  $P_i = P_i(\varphi(E > 10 \text{ MeV}), R = 40 \text{ cm})$  wird sich bei einem Wechsel zu einem anderen Radius also nur dann stark ändern, wenn für diesen Radius die sekundären Teilchen nicht mehr den überwiegenden Anteil an der Produktion haben, wie dies für die kleinen Meteoroiden ( $R \lesssim 15 \text{ cm}$ ) der Fall ist. Der Effekt wurde unter der Annahme abgeschätzt, daß sich die relative Zunahme der Produktionsraten der sekundären Teilchen in Abhängigkeit von  $M$  für die anderen Radien ähnlich wie für  $R = 40 \text{ cm}$  verhält. So nimmt für  $^{22}\text{Na}$  in L-Chondriten mit  $R = 40 \text{ cm}$  die Produktionsrate bei Änderung von  $M = 300 \text{ MeV}$  nach  $M = 650 \text{ MeV}$  für  $\varphi(E > 10 \text{ MeV}) = 1 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  um 30 % zu. Für die Meteoroiden mit Radien größer als 25 cm liegt die Variation auch im Bereich von 30 %, für einen Meteoroiden mit  $R = 5 \text{ cm}$  jedoch würde dieser Anstieg nur 12 % betragen. Als Konsequenz daraus sollten die Aktivierungsrechnungen mit  $P_i = P_i(\varphi(E > 10 \text{ MeV}), R = 40 \text{ cm})$  somit nur auf große Meteoroiden mit  $R \geq 25 \text{ cm}$  übertragen werden.

Unter der Annahme, daß sich für diese großen Radien die relativen Verläufe  $P_i = P_i(\varphi(E > 10 \text{ MeV}))$  ähnlich verhalten, wurde somit die Protonenflußdichte  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  aus der Beziehung

$$\varphi(E > 10 \text{ MeV}) = \frac{P(t_{\text{Fall}}, R=40 \text{ cm}) \text{ aus Gleichung (7.2)}}{P(M=650 \text{ MeV}, R=40 \text{ cm}, \varphi(E > 10 \text{ MeV}) = 1 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}) \cdot 1.552} \quad (7.3)$$

berechnet. Mit dieser über den Zeitraum vor dem Fall mit der Halbwertszeit des Nuklides gemittelten Protonenflußdichte werden die berechneten mit den gemessenen Produktionsraten verglichen.

### 7.1.2.2 Das Nuklid $^{44}\text{Ti}$

Während für die kurzlebigen Nuklide  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{22}\text{Na}$  die Messungen der Neutronenmonitore zur Berechnung von  $P_i(t_{\text{Fall}})$  ausreichend sind, muß hierfür für das Nuklid  $^{44}\text{Ti}$  auf eine weitere Korrelation zurückgegriffen werden. Denn die Fallzeitpunkte von Meteoriten, in denen  $^{44}\text{Ti}$  gemessen wurde, liegen zumeist vor der Inbetriebnahme des Climax 1953.

Diese von Bonino et al. [BO95] für den Zeitraum 1953 bis 1992 angegebene Korrelation verknüpft die jährlichen Sonnenfleckenzenzahlen  $SP(t)$  mit der Neutronenmonitorrates des Climax  $N_m$ :

$$N_m(t) = 4265.133 - 3.961559 \cdot SP(t-1) - 0.0116098 \cdot [SP(t-1)]^2 + 6.018108 \cdot 10^{-5} \cdot [SP(t-1)]^3 \quad (7.4)$$

Die  $N_m$  wurden demgemäß bis zum Jahr 1700 zurückextrapoliert, in Gleichung (7.1) eingesetzt und mit den so berechneten  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  die Aktivierung mit Gleichung (7.2) mit  $t_{E,k} - t_{B,k} = 1 \text{ a}$  berechnet.

## 7.2 Die Produktion der kurzlebigen Nuklide $^{54}\text{Mn}$ , $^{22}\text{Na}$ und $^{57}\text{Co}$

In diesem Kapitel werden die unter Berücksichtigung der Modulationsabhängigkeit nach Kapitel 7.1.2.1 theoretisch berechneten Produktionsraten der Nuklide  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{57}\text{Co}$  mit den in Meteoriten gemessenen Produktionsraten verglichen.

In früheren Arbeiten [EV82, BH94A, BH94B] wurde ein solcher Vergleich für die kurzlebigen Nuklide häufig derart vorgenommen, daß in einzelnen Meteoritenstücken gemessene Produktionsraten zunächst auf eine gemeinsame Chemie und Abschirmtiefe korrigiert wurden, wobei für letzteres andere Nuklide oder auch Cosmic Ray Tracks herangezogen wurden. Der Verlauf der korrigierten Produktionsraten über den Fallzeitpunkt wurde dann mit den theoretischen Rechnungen dazu verglichen. Aufgetretene Diskrepanzen gaben Hinweise auf die örtliche Abhängigkeit der GCR.

Im folgenden wird ein anderer Ansatz für den Vergleich mit den experimentellen Daten gewählt. In dieser Arbeit werden die mit Gleichung (7.2) berechneten  $P_i(t_{\text{Fall}})$  mit Produktionsraten von Meteoriten *gut* bekannter präatmosphärischer Geometrien verglichen. Gegenüber der obigen Methode ist dieser Vergleich aussagekräftiger, da hierbei die Unsicherheit der Korrektur für die chemische Zusammensetzung und die Abschirmtiefe entfällt. Darüber hinaus liegen für die ausgewählten Meteorite zum einen zum Teil Aussagen über die Orbitparameter vor und zum anderen wurden gleich mehrere Stücke dieser Meteorite auf die kurzlebigen Nuklide hin gemessen. Eine solche breite Datenbasis bietet ein gutes Fundament, um die Möglichkeit einer Aussage über die räumliche Variation der GCR zu untersuchen.

### 7.2.1 Der Meteorit Jilin

Der am 8. März 1976 in Kirin im Nordosten von China gefallene H-Chondrit Jilin [JO77] ist durch zwei Konsortiumstudien [JI85, JI96] sehr gut untersucht. Insbesondere mit den größten- und tiefensensitiven Meßgrößen der Cosmic Ray Tracks und der Produktionsraten des Nuklids  $^{60}\text{Co}$  wurde der Radius zu  $80(+10 -5) \text{ cm}$  bestimmt [HE96]. Von den kurzlebigen Nukliden wurde mit zerstörungsfreier  $\gamma$ -Spektroskopie ein Tiefenprofil für  $^{22}\text{Na}$  gemessen.

Abbildung 7.3 zeigt die  $^{22}\text{Na}$ -Produktionsraten der Cores A und B. Mit weiteren hier nicht gezeigten Meßwerten ergibt sich insgesamt ein konstantes Tiefenprofil mit einer mittleren Produktionsrate von 105 dpm/kg. Das berechnete Tiefenprofil ist für die Tiefen größer als 20 cm ebenfalls konstant bei einer Produktionsrate von 93 dpm/kg, die mit  $M = 570$  MeV berechnet wurde. Diese Produktionsrate ist erhöht gegenüber der über den Zeitraum von 1960 bis März 1996 langzeitgemittelten Produktionsrate; denn für diese Zeitspanne ergibt sich ein gemittelter Modulationsparameter von  $M = 670$  MeV. Dies entspricht nach Abbildung 7.2 der Tatsache, daß der Fall Jilins während eines Zeitraums niedriger solarer Aktivität erfolgte.

Innerhalb der Unsicherheit der berechneten Produktionsrate von 13 % werden die experimentellen Werte zwar wiedergegeben, Theorie und Experiment weichen jedoch systematisch um 10 % ab. Ordnet man diese Diskrepanz der räumlichen Variation der Flußdichte zu, so ergibt sich je nach angenommenen mittleren Orbitabstand zwischen 2 und 3 A.U. für  $\phi$  ein radialer Gradient zwischen 5 und 10 %/A.U. Dieser Bereich ist leicht zu hoch gegenüber den mit IMP, Pioneer 10 und Pioneer 11 gemessenen radialen Gradienten, die von 1973 bis 1976 eine Abnahme des Gradienten von etwa 4 % auf 2.5 % registrierten [MK82, LO93]. Der longitudinale Gradient für die Bahn Jilins könnte somit ebenfalls ein Beitrag zur Erklärung der hohen Produktionsraten sein.

Eine weitere Tatsache, die sich auch bei der folgenden Diskussion der anderen Meteorite zeigt, ist die Streuung der experimentellen Daten untereinander. Die  $^{22}\text{Na}$ -Produktionsraten mit ähnlichen Tiefen weichen für Jilin um bis zu 20 dpm/kg voneinander ab. Die gegenseitigen Abweichungen liegen zwar in den meisten Fällen innerhalb der angegebenen Unsicherheiten, trotzdem bleibt der Effekt als solches festzuhalten. Unter der Voraussetzung der Richtigkeit der Tiefen der Proben und einer für alle etwa 150 g schweren Stücke gerechtfertigten Annahme einer gleichen mittleren chemischen H-Chondrit Zusammensetzung ist diese Streuung physikalisch mit Hilfe der Modellrechnungen nicht zu erklären.

Dieser Effekt liegt wahrscheinlich in der Meßmethode der zerstörungsfreien  $\gamma$ -Spektroskopie selbst. Denn die Bestimmung von Produktionsraten in solch großen Meteoritenstücken ist mit einem erheblichen experimentellen Aufwand verbunden. Zentrale Probleme dabei sind die genaue Erstellung des Ansprechvermögens für die Geometrien der Bruchstücke sowie die akkurate Berücksichtigung der Selbstabsorption der  $\gamma$ -Quanten.

Diese Schwierigkeiten werden derart bearbeitet, daß für die gemessenen Stücke jeweils in ihren physikalischen Eigenschaften möglichst ähnliche Kopien vermengt mit Standardlösungen der zu messenden Nuklide angefertigt werden - im Falle Jilins und Mbales (Kapitel 7.2.2) [PI94, HE85]. Bei der Messung der Proben von St. Robert (Kapitel 7.2.3) wurde jedoch wegen des Aufwandes auf eine Anfertigung individueller Standards verzichtet, wodurch die Genauigkeit der Messungen verringert wird [BR96]. Trotz oder gerade wegen der aufwendigen und anspruchsvollen Messung von Meteoritenstücken mit zerstörungsfreier  $\gamma$ -Spektroskopie scheint den Ergebnissen die angesprochene Streuung inhärent zu sein. Daraus ergibt sich schon jetzt eine wichtige Schlußfolgerung. Solange diese Streuung der Meßwerte nicht ausgeschlossen werden kann, ist es problematisch nur einen einzigen Meßwert für einen Meteoriten zum Vergleich mit berechneten Daten heranzuziehen - wie dies in der Arbeit von Evans et al. [EV82] gemacht wurde. Es ist dann nicht möglich zu beurteilen, ob eine Diskrepanz zwischen Experiment und Theorie durch eine zufällige Abweichung des Meßwertes oder durch einen echten physikalischen Effekt begründet ist. Demgegenüber bieten viele Meßwerte von Stücken eines Meteoriten, wie im Falle Jilins, eine breitere Grundlage zur Interpretation.

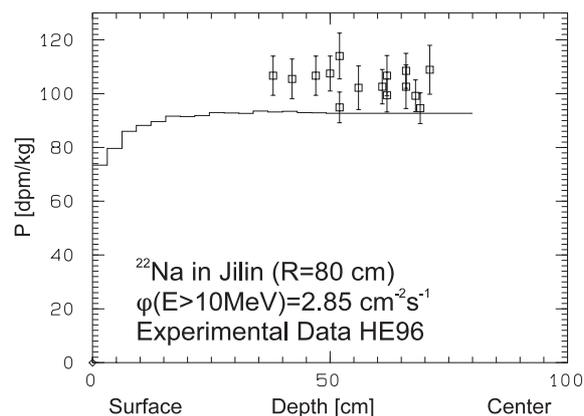


Abbildung 7.3 Theoretisch berechnete (durchgezogene Linie) und experimentell gemessene [HE96]  $^{22}\text{Na}$ -Produktionsraten in Jilin. Die Daten sind in Zerfällen pro Minute und Kilogramm (desintegrations per minute and per kilogramm = dpm/kg) angegeben.

## 7.2.2 Der Meteorit Mbale

Der L-Chondrit Mbale fiel am 14. August 1992 in Uganda als Schauer [JE94]. Von ihm wurden an 14 Fragmenten Messungen der kurzlebigen Nuklide  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{22}\text{Na}$  sowie von  $^{26}\text{Al}$  vorgenommen [PI94, SU95]. Von sechs dieser Bruchstücke liegen auch Cosmic Ray Track Messungen vor, mit denen der Radius des Meteoroiden zu  $R = 40\text{ cm}$  bestimmt wurde und für diese Proben die Abschirmtiefen festgelegt wurden [ME97].

Abbildung 7.4 zeigt die theoretischen und experimentellen Produktionsraten in Mbale. Der Fallzeitpunkt folgt nach Abbildung 7.2 einer Phase hoher solarer Aktivität, so daß die Produktionsraten der kurzlebigen Nuklide unterhalb der mittleren Produktionsraten ( $M = 670\text{ MeV}$ ) liegen. Dies schlägt sich in den niedrigen in Abbildung 7.4 angegebenen Flußdichten  $\phi(E > 10\text{ MeV})$  nieder.

Wie in Kapitel 7.2.1 bereits angedeutet, zeigen die Produktionsraten auch für Mbale eine starke Streuung. Dies zeigt sich sowohl für die Tiefenprofile als auch für die Korrelationen der Produktionsraten der kurzlebigen Nuklide gegen die des langlebigen Nuklids  $^{26}\text{Al}$ . Die Gründe dafür wurden bereits diskutiert.

Die gemessenen Tiefenprofile der Produktionsraten der Nuklide  $^{22}\text{Na}$  und  $^{57}\text{Co}$  (Abbildung 7.4 links) werden zum großen Teil von den Rechnungen wiedergegeben, bedenkt man die experimentellen und theoretischen Unsicherheiten. Das Tiefenprofil für  $^{54}\text{Mn}$  jedoch wird von den Rechnungen systematisch um etwa 10 % bis 20 % überschätzt. Betrachtet man außerdem die theoretischen Korrelationen der Produktionsraten der kurzlebigen Nuklide gegen die des Nuklids  $^{26}\text{Al}$ , so zeigen diese insbesondere für die Nuklide  $^{22}\text{Na}$  und  $^{57}\text{Co}$  eine von den experimentellen Werten abweichende Steigung.

Dies ergibt sich auch dadurch, daß viele experimentelle Werte im Bereich der Produktionsraten der Modellrechnungen des Tiefenintervalls  $[0, 5]\text{ cm}$  von der Oberfläche liegen; diese Tiefen sind jedoch für die Herkunft der Proben infolge der Ablation unwahrscheinlich. Im Falle  $P(^{22}\text{Na})$  gegen  $P(^{26}\text{Al})$  trägt außerdem dazu bei, daß die experimentellen  $P(^{22}\text{Na})$  gut beschrieben, die zugehörigen  $P(^{26}\text{Al})$  jedoch von der Theorie überschätzt werden - dies deuten die waagerechten gestrichelten Linien in Abbildung 7.4 an.

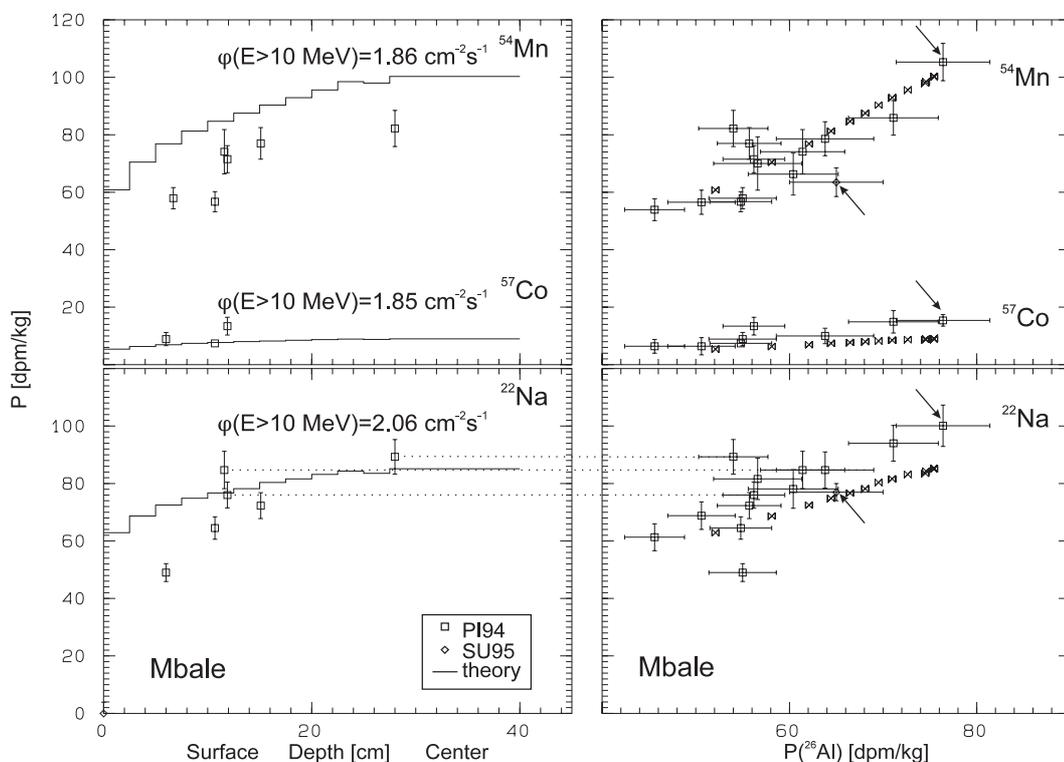


Abbildung 7.4 Experimentelle und theoretische Produktionsraten der Nuklide  $^{57}\text{Co}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{22}\text{Na}$  und  $^{26}\text{Al}$  im L-Chondriten Mbale. Die theoretischen Werte sind für einen Radius von  $R = 40\text{ cm}$  berechnet.

Betrachtet man die experimentellen Werte einzelner Stücke näher, so kann für sie keine alle Nuklide umfassende konsistente Interpretation gegeben werden. So wird der Datenpunkt von Suthar et al. [SU95] in der Korrelation  $P(^{22}\text{Na})$  gegen  $P(^{26}\text{Al})$  gut durch die theoretische Produktionsrate des Tiefenintervalls [7.5, 10] cm beschrieben. Für diese Tiefe wird die experimentelle Produktionsrate  $P(^{54}\text{Mn})$  jedoch um 26 % überschätzt. Ein ähnliches Bild ergibt sich für die experimentellen Werte des zweiten in Abbildung 7.4 markierten Stückes, für das der gemessene Wert  $P(^{54}\text{Mn})$  gegen  $P(^{26}\text{Al})$  gut beschrieben wird, die zwei weiteren Korrelationspunkte jedoch nicht.

Worin können die beschriebenen Diskrepanzen begründet sein? Eine Abweichung der chemischen Zusammensetzung der gemessenen Meteoritenstücke von der für die Rechnungen angenommenen mittleren chemischen Komposition ist auszuschließen. Denn alle gemessenen Stücke hatten Massen von über 30 g, so daß eine mittlere L-Chondritische Zusammensetzung gerechtfertigt ist. Um die Überschätzung des  $^{54}\text{Mn}$ -Tiefenprofils zu erklären, müßte der Eisengehalt 18.7 % anstatt wie bei L-Chondriten üblich 21.9 % betragen haben, da Eisen das Haupttargetelement für die Produktion von  $^{54}\text{Mn}$  ist. Dies ist für *alle* Stücke unwahrscheinlich und würde auch nicht der Klassifizierung als L-Chondriten entsprechen, die auch über den Eisengehalt erfolgt.

Durch die hohen Massen der gemessenen Meteoritenstücke von bis zu knapp 400 g tritt jedoch ein weiteres Problem auf. Denn unter der Annahme einer kugelförmigen Probe haben diese immerhin einen Radius von etwa 2.7 cm. Durch solche großen Proben tritt eine Fehlerquelle dadurch auf, daß in den nachgebildeten Meteoritenstücken die radioaktive Standardlösung homogen verteilt wurde. Im Gegensatz dazu ist die Aktivierung in der Meteoritenprobe nicht homogen, sondern sie ist höher in dem Teil des Stückes, das im Meteoroiden näher zum Zentrum gelegen war. Dadurch wird ein systematischer Fehler verursacht, dessen Größe sich schwer abschätzen läßt. Er sollte jedoch gering sein, da die Variation der Produktionsraten bei Änderung der Tiefe von 5 cm kleiner als 10 % ist. Zudem ist der Gradient des Tiefenprofils an der Oberfläche am größten, von der die Proben jedoch infolge der Ablation sehr unwahrscheinlich stammen.

Ein weiterer Punkt zur Diskussion der festgestellten Diskrepanzen ist, daß die in Abbildung 7.4 gezeigten Tiefenprofile mit  $M = 650$  MeV berechnet wurden, tatsächlich aber für die Nuklide höhere  $M$  durch die Aktivierungsrechnung ermittelt wurden ( $^{22}\text{Na}$ :  $M=770$  MeV,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{57}\text{Co}$ :  $M=840$  MeV). Durch diese höheren Modulationsparameter ergibt sich ein steileres Tiefenprofil, da mit höherem  $M$  die mittlere Energie der einfallenden GCR-Teilchen ansteigt und so mehr Sekundärteilchen im Meteoroiden produziert werden. Sowohl für  $^{54}\text{Mn}$  als auch für  $^{22}\text{Na}$  wären die Profile mit höherem  $M$  jedoch nur um etwa 2 % steiler, wodurch also die Abweichungen an der Oberfläche ebenfalls nicht erklärt werden.

Aus den Meßwerten  $M_{\text{bales}}$  Folgerungen für den räumlichen Gradienten von  $\phi$  zu ziehen, ist angesichts dieser Diskrepanzen problematisch. Betrachtet man nur die Tiefenprofile und vernachlässigt den radialen Gradienten, der vor dem Fall nur etwa 1.5 %/A.U. bis 2 %/A.U. betrug [LO93], so würde eine Erniedrigung der Flußdichte durch den latitudinalen Gradienten um 20 % die niedrigen experimentellen  $^{54}\text{Mn}$ -Daten erklären. Die  $^{22}\text{Na}$ -Werte würden dadurch nur um etwa 10 % geändert, was im Rahmen der Unsicherheiten akzeptabel wäre. Allerdings wäre dies nicht mit den  $^{57}\text{Co}$ -Produktionsraten vereinbar. Die Konsequenzen aus dieser unbefriedigenden Situation werden in Kapitel 7.2 4 zusammengefaßt.

### 7.2.3 Der Meteorit St. Robert

Der H-Chondrit St. Robert fiel am 15. Juni 1994 über Québec, Kanada, als Schauer. An insgesamt 14 der gefundenen Stücke wurden kurzlebige Nuklide gemessen, von denen im folgenden  $^{22}\text{Na}$  und  $^{54}\text{Mn}$  diskutiert werden. Aus der Beobachtung des Fallszenarios wurde eine wahrscheinlichste Inklination von  $0.7^\circ$  sowie ein Radius von 45 bis 50 cm abgeleitet [BR96]. Weitere Untersuchungen mit Hilfe langlebiger kosmogener Nuklide [HE97] schränken den Radius auf Werte zwischen 40 und 60 cm ein.

In Abbildung 7.5 sind die experimentellen und theoretischen Produktionsraten der beiden kurzlebigen Nuklide  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{22}\text{Na}$  gegenüber denen des langlebigen Nuklids  $^{26}\text{Al}$  aufgetragen. Der Zeitpunkt des Falles folgt auf eine Periode hoher solarer Aktivität, so daß die Produktionsraten von  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{22}\text{Na}$  gegenüber den mittleren Werten ( $M = 670$  MeV) erniedrigt sind.

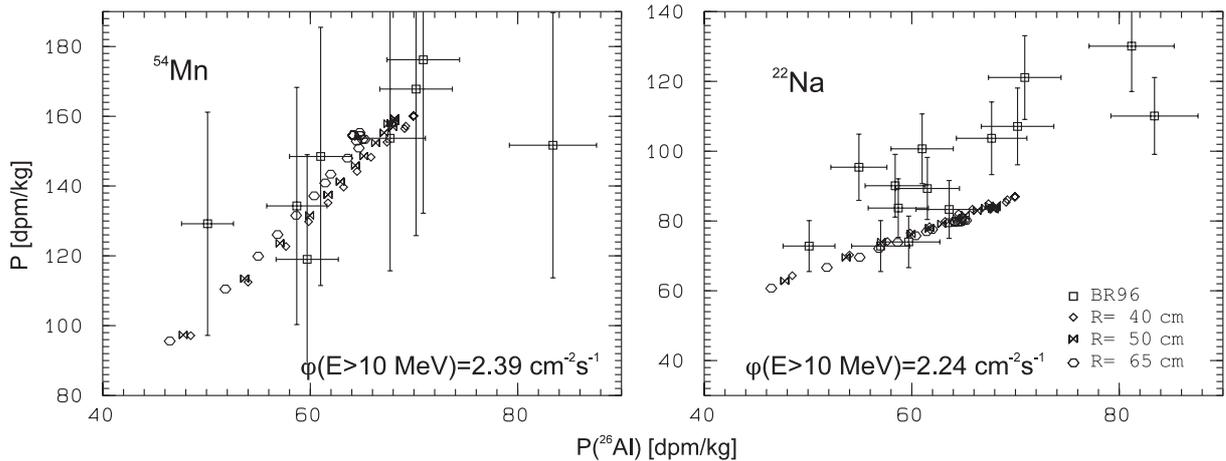


Abbildung 7.5 Experimentelle und theoretische  $^{54}\text{Mn}$ - und  $^{22}\text{Na}$ -Produktionsraten für St. Robert aufgetragen gegen die  $^{26}\text{Al}$ -Produktionsraten.

Für die Modellrechnungen sind die Radien  $R = 40, 50$  und  $65$  cm eingezeichnet, die den Bereich des wahrscheinlichsten Radius für St. Robert umfassen. Daß sich diese Radien um bis zu  $25$  cm unterscheiden, wirkt sich kaum auf die Beurteilung aus, wie gut die experimentellen Daten beschrieben werden. Denn die angegebenen Radien liegen gerade in einem Bereich, in dem die Produktionsraten abhängig vom Radius nicht sehr stark variieren. So unterscheiden sich beispielsweise die Zentrumsproduktionsraten von  $^{22}\text{Na}$  für  $R = 40$  cm und  $R = 65$  cm nur um knapp  $10\%$ .

Fast alle gemessenen  $^{54}\text{Mn}$ -Produktionsraten werden im Rahmen ihrer experimentellen Unsicherheiten von den theoretischen Rechnungen beschrieben. Dagegen zeigen die  $^{22}\text{Na}$ -Produktionsraten und auch die des langlebigen  $^{26}\text{Al}$  gegenüber den theoretischen Rechnungen um bis zu  $30\%$  erhöhte Werte. Dies ist für das kurzlebige  $^{22}\text{Na}$  um so erstaunlicher, als das die Periode hoher solarer Aktivität vor dem Fall die Produktionsraten hätte verringern sollen.

Die Diskussionspunkte zur Erklärung der Diskrepanzen sind die gleichen wie im Falle Mbales und liefern keine Lösung. Aus der Übereinstimmung der  $^{54}\text{Mn}$ -Produktionsraten läßt sich nur folgern, daß sich radialer und longitudinaler Gradient für den Zeitraum etwa zwei Jahre vor dem Fall ausgleichen. Eine Erhöhung der  $^{22}\text{Na}$ -Produktionsraten durch einen Gradienten vor dieser Zeit würde eine Erhöhung der Flußdichte von mindestens  $30\%$  erfordern. Ein solch un stetiges Verhalten ist jedoch nicht realistisch.

## 7.2.4 Zusammenfassende Bewertung

Die Berechnung der Produktionsraten der diskutierten kurzlebigen Nuklide  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  und  $^{57}\text{Co}$  in Meteoroiden erfolgt mit einer Gesamtunsicherheit von  $13\%$ . Demgegenüber weisen die gemessenen Produktionsraten von Meteoritenbruchstücken erhebliche Unsicherheiten auf, die je nach Nuklid bis zu  $25\%$  betragen. Sie zeigen außerdem für stetig berechnete Verläufe von Tiefenprofilen (Abbildung 7.3 und 7.4) oder Korrelationen gegen die  $^{26}\text{Al}$ -Produktionsrate (Abbildung 7.4 und 7.5) eine starke Streuung, die physikalisch nicht erklärt wird. Außerdem werden die für die diskutierten Meteorite an vielen Bruchstücken bestimmten Produktionsraten unterschiedlicher Nuklide in ihrer Gesamtheit nicht konsistent interpretiert.

Solange diese Probleme nicht gelöst sind, sind Schlußfolgerungen über die räumliche Variation der kosmischen Strahlung mit Hilfe der Produktion kurzlebiger kosmogener Nuklide nicht möglich. Insbesondere muß auch die oben beschriebene, von Evans et al. [EV82] gewählte Auftragung als kritisch betrachtet werden.

Zur Bestimmung von Gradienten von  $\phi$  müßte die Genauigkeit der Meßwerte erheblich verbessert werden. Zu denken wäre an eine Bestimmung der Produktionsraten mit Hilfe von AMS, die für die

leichten Nuklide  $^{26}\text{Al}$  und  $^{10}\text{Be}$  gute Ergebnisse gibt [ME98]. Dazu wären Vergleiche der mit AMS und mit zerstörungsfreier  $\gamma$ -Spektroskopie gemessenen Produktionsraten sehr interessant.

Grundsätzlich ist jedoch zu bedenken, daß mit Hilfe kurzlebiger kosmogener Nuklide getroffene Aussagen über die spatiale Variation der GCR immer mit einer erhöhten Unsicherheit gegenüber direkten Messungen verbunden sind. Diese resultiert durch die Rekonstruktion der Abschirmtiefe und der Geometrie der Meteoroiden sowie aus der nur für wenige Meteorite möglichen genauen Orbitbestimmung. Mit Hilfe kosmogener Nuklide abgeleitete Gradienten liefern daher nur für die jeweiligen Bahnparameter gültige spezielle Aussagen, deren Konsistenz mit direkten Messungen überprüft werden muß. Der komplexe räumliche Verlauf der kosmischen Strahlung kann nur mit Hilfe von Sonden gemessen werden - Untersuchungen hierzu werden intensiv durchgeführt [SI92, LO93, HE93].

## 7.3 Die Produktion von $^{44}\text{Ti}$

Die kurzlebigen Nuklide  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{57}\text{Co}$  speichern in ihren Produktionsraten Information über  $\phi$  in Abhängigkeit der Sonnenaktivität über einen Zeitraum von etwa zehn Jahren. Mit ihnen wird daher die Variation der Sonnenaktivität mit dem Schwabe Zyklus aufgezeichnet. Demgegenüber wird mit dem längerlebigen  $^{44}\text{Ti}$  untersucht, wie sich  $\phi$  über Zeiträume von Jahrhunderten und somit über Perioden des Gleissberg Zyklus hinweg verhält. Mit dieser Motivation wird und wurde daher eine ganze Reihe von Meteoriten mit Fallzeitpunkten zwischen 1800 und heute gemessen [BO95, BO98]. Zu diesen Messungen sind Modellrechnungen für  $^{44}\text{Ti}$  eine wichtige Ergänzung.

Da Modellrechnungen für  $^{44}\text{Ti}$  in unserer Arbeitsgruppe bisher nicht durchgeführt wurden, mußten zunächst die Grundlagen hierfür bereitgestellt werden. Als erster Schritt dazu wurde in Kapitel 5.1.2 gezeigt, daß mit dieser Arbeit die Wirkungsquerschnitte Protonen-induzierter Reaktionen an den Targetelementen Titan, Eisen und Nickel konsistent und vollständig vorliegen. Denn diese bilden nach Gleichung (1.1) die Grundlage für eine genaue Modellierung - neben den Anregungsfunktionen der Neutronen-induzierten Reaktionen, auf deren Erstellung im folgenden Kapitel 7.3.1 eingegangen wird. Die mit diesem vollständigen Satz von Anregungsfunktionen berechneten Produktionsraten in Meteoroiden und ihr Vergleich mit experimentellen Werten wird dann in Kapitel 7.3.2 und 7.3.3 vorgestellt.

### 7.3.1 Dicktargetproduktionsraten für $^{44}\text{Ti}$

Die Anregungsfunktionen der Neutronen-induzierten Reaktionen wurden mit der in Kapitel 3.2 beschriebenen Methode aus den in Dicktargetexperimenten gemessenen  $^{44}\text{Ti}$ -Produktionsraten entfaltet. Dafür standen in dieser Arbeit Titan-, Eisen- und Nickelproben zur Verfügung, die in zwei verschiedenen dicken Targets positioniert waren. In einem ersten Experiment wurde eine Gabbrokugel mit einem Radius von  $R = 25\text{ cm}$  [LU93], in einer zweiten Bestrahlung eine Eisenkugel mit  $R = 10\text{ cm}$  [LY96] homogen und isotrop mit Protonen der Energie  $1.6\text{ GeV}$  bestrahlt.

Folien der genannten Elemente waren in Bohrungen innerhalb dieser Kugeln an verschiedenen Tiefen positioniert. Nach der Bestrahlung wurden sie aus den dicken Targets entnommen und auf die erzeugten Restkerne hin gemessen. Die Ergebnisse dieser Messungen sind die Produktionsraten in Abhängigkeit ihrer Position in der Kugel, die zusammen das sogenannte Tiefenprofil darstellen.

Aus diesen Experimenten wurden für  $^{44}\text{Ti}$  bisher nur die Tiefenprofile für Eisen und Titan in der Gabbrokugel [SC95] gemessen. In dieser Arbeit wurden die weiteren vier Tiefenprofile von  $^{44}\text{Ti}$  gemessen, so daß nun der vollständige Satz von Produktionsraten für diese Experimente vorliegt; aus Gründen, die unten erläutert werden, wurden die Anregungsfunktionen für die Neutronen-induzierte Produktion von  $^{44}\text{Ti}$  jedoch nur mit den in *dieser* Arbeit gemessenen Produktionsraten entfaltet.

Hierfür ist als erster Schritt die Erstellung der *a priori*-Anregungsfunktionen nötig. Für die Produktion aus Titan wurden hierfür im niederenergetischen Bereich mit dem Programm AREL [BL83] berechnete Wirkungsquerschnitte benutzt. Im Code AREL ist das Hybridmodell der Präequilibriumreaktionen

[BL83] umgesetzt. An diese wurden bei 300 MeV die Ergebnisse der Berechnungen des Codes HETC [CL88] angepaßt, in dem das Modell Intranukleare Kaskade/Evaporation [SE47] implementiert ist. Für die Produktion des  $^{44}\text{Ti}$  aus Eisen und Nickel durch vorwiegend hochenergetische Neutronen wurde lediglich die Schwellenenergie aus den AREL Rechnungen entnommen, ansonsten wurde für sie vollständig auf die Resultate des HETC Codes zurückgegriffen.

Für Titan wurde die *a priori*-Anregungsfunktion mit Hilfe des Programms STAYSL [PE77] mit der in der Arbeit Leyas [LY96] vorgestellten Methode an den durch die sekundären Neutronen induzierten Anteil der gemessenen Produktionsrate angepaßt. Dagegen wurden die *a priori*-Anregungsfunktionen der Elemente Eisen und Nickel mit Hilfe des Einparameterfits [LU93] unter Beibehaltung ihrer Form nur in ihren Absolutwerten modifiziert.

Denn für diese beiden Elemente wird  $^{44}\text{Ti}$  infolge der hohen Massenzahldifferenz zu den Haupttargetisotopen  $^{56}\text{Fe}$  und  $^{58}\text{Ni}$  vorwiegend durch Neutronen mit Energien größer als 200 MeV produziert. Da die spektralen Flußdichten für diese hohen Energien in den Dicktargetexperimenten nicht sehr ausgeprägt sind (Abbildung 1.1), ergibt die Entfaltung nichtphysikalische Verläufe in den Anregungsfunktionen.

Die Ergebnisse der  $^{44}\text{Ti}$ -Modellrechnungen mit den so erstellten Anregungsfunktionen sowie die gemessenen Produktionsraten sind in Abbildung 7.6 für beide Dicktargetexperimente gezeigt und in Anhang C tabelliert. Bevor auf die Übereinstimmung von Theorie und Experiment eingegangen wird, wird kurz die Phänomenologie der Profile dargelegt. Für das Targetelement Titan ist  $^{44}\text{Ti}$  ein Niederenergieprodukt, dessen Tiefenprofil zum Zentrum hin um etwa 30 % ansteigt. Denn die hohen Wirkungsquerschnitte im Niederenergetischen (Abbildung 5.2) haben zur Folge, daß  $^{44}\text{Ti}$  vorwiegend durch niederenergetische sekundäre Protonen und Neutronen erzeugt wird, deren Flußdichten zum Zentrum hin zunehmen und dort erhöhte Produktionsraten bewirken.

Im Gegensatz dazu erfolgt die Produktion von  $^{44}\text{Ti}$  aus Eisen und Nickel hauptsächlich durch hochenergetische Protonen und Neutronen mit Energien oberhalb von 200 MeV - dies zeigen die Anregungsfunktionen  $^{\text{nat}}\text{Fe}, ^{\text{nat}}\text{Ni}(p, x\text{pyn})^{44}\text{Ti}$  in Abbildung 5.3. An der Oberfläche haben die primären Protonen daher den überwiegenden Anteil an der Produktion, der zum Zentrum jedoch durch ihre Absorption abnimmt. Diese Verminderung wird durch das Ansteigen der Produktionsraten der sekundären Neutronen und Protonen zum Zentrum kompensiert. Die Flußdichten der hochenergetischen Teilchen nehmen zum Zentrum jedoch weniger zu als die der niederenergetischen Partikel. Im Gegensatz zum Titan ergeben sich daher flache Profile, die für Eisen um etwa 10 %, für Nickel sogar nur um etwa 5 % zum Zentrum zunehmen.

Im Unterschied zum berechneten Anstieg fällt das von Schiekel [SC95] gemessene Tiefenprofil aus Eisen zum Zentrum hin ab und Schiekels Produktionsraten liegen um 10 % bis 35 % unterhalb der simulierten. Legt man die Daten bei 5.7 cm und 7.7 cm Tiefe zugrunde und verwirft die den falschen Verlauf andeutenden zentrumsnahen Werte, so ergibt sich in Übereinstimmung mit dem Profil aus Titan eine Überschätzung der Schiekelschen Werte durch die Rechnungen um etwa 20 %.

Als Erklärung für diese Diskrepanz werden im folgenden der Effekt der echten Koinzidenzen und der von Schiekel benutzte Geometriefaktor  $F_{\text{geo}}$  diskutiert. Als Fehlerquelle ausgeschlossen wird dagegen das von Schiekel verwendete Ansprechvermögen. Denn seine Messungen wurden auf dem Detektor GEINO in Köln im Abstand von null Zentimeter vorgenommen und die Auswertung erfolgte mit demselben Ansprechvermögen wie in der Arbeit Daunkes [DA94]. Da die Werte dieser Arbeit und der Daunkes [DA94] wiederum gut übereinstimmen (Tabelle 4.13), wird davon ausgegangen, daß Schiekels Ansprechvermögen für den Detektor GEINO richtig ist.

Dieses Ansprechvermögen wurde in Daunkes Arbeit erstellt, wobei echte Koinzidenzen berücksichtigt wurden, während diese in Schiekels Arbeit bei der Auswertung nicht korrigiert wurden. Da Schiekels Messungen jedoch bei null Zentimeter Abstand erfolgten, darf dieser Effekt nicht vernachlässigt werden. Denn die ausgewerteten Linien mit den Energien 68 keV und 78 keV sind  $\gamma$ -Quanten einer Kaskade (ähnlich  $\gamma_2$  und  $\gamma_8$  ohne die anderen  $\gamma$ -Quanten in Abbildung 4.11). Da diese niedrigen  $\gamma$ -Energien im Bereich unterhalb des Maximums der totalen Efficiency liegen, wird davon ausgegangen, daß die totale Efficiency so hohe Werte hatte, daß eine signifikante Verminderung der Zählraten beider Linien vorlag. Da keine Korrektur dieses Effektes erfolgte, führte dies zu systematisch zu niedrigen Produktionsraten.

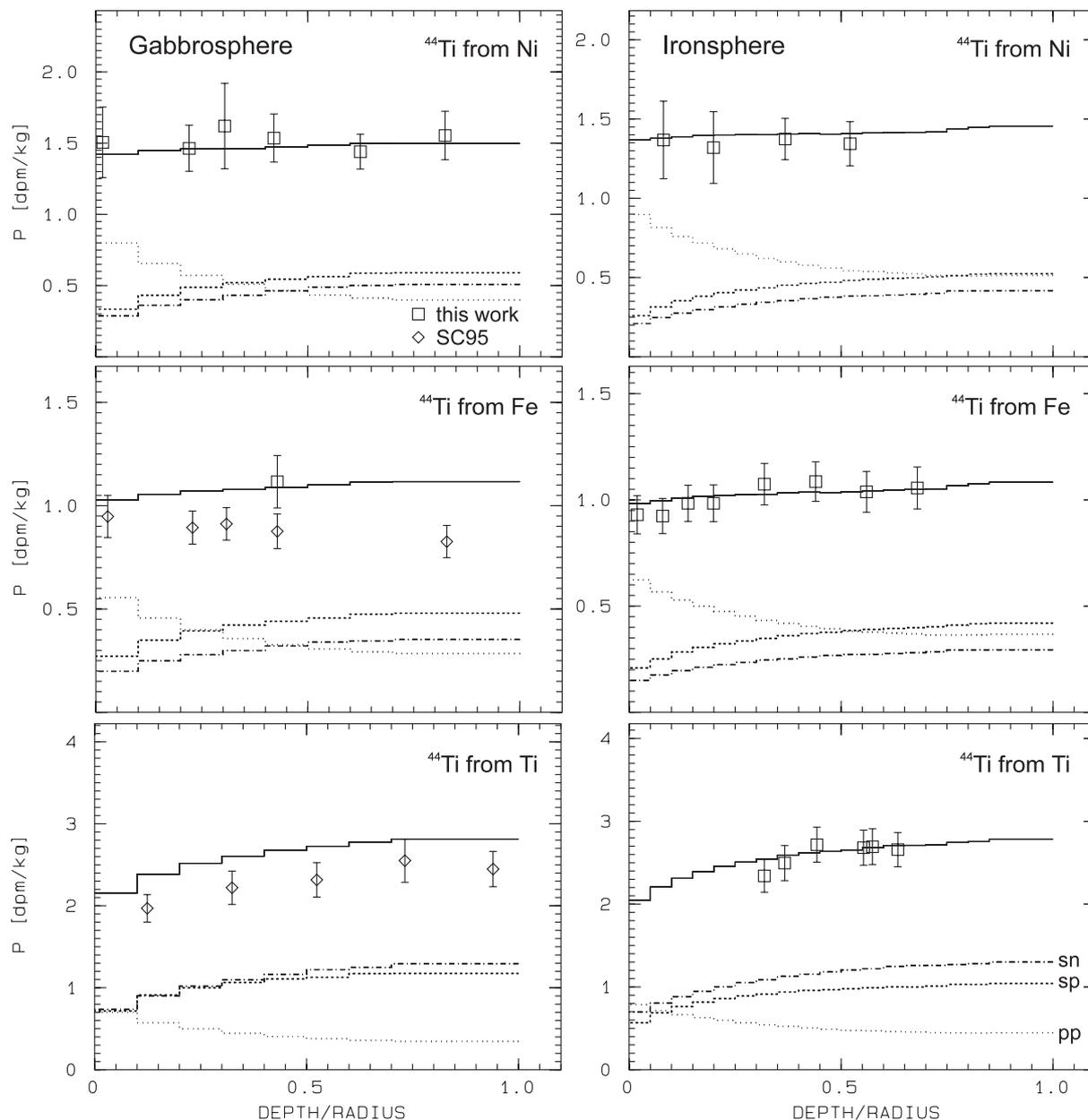


Abbildung 7.6 Theoretische und experimentelle Dicktargetproduktionsraten für  $^{44}\text{Ti}$  aus Titan, Eisen und Nickel in der Gabbro- (links) und der Eisenkugel (rechts). Für die berechneten Werte sind außerdem die Anteile der primären (pp) und sekundären Protonen (sp) sowie der sekundären Neutronen (sn) an der Produktion angegeben.

Der zweite zu diskutierende Punkt ist der von Schiekel bei der Auswertung angewendete Geometriefaktor  $F_{\text{geo}} = 1.073$ , der der Änderung des Ansprechvermögens über der Dimension der Bestrahlungsproben (Durchmesser von 15.7 mm) gegenüber Punktpräparaten Rechnung trägt. Schiekels Faktor  $F_{\text{geo}}$  bewirkt eine Erhöhung des Ansprechvermögens, was physikalisch sinnvoll nicht zu erwarten ist, da dieses im Gegenteil axial nach außen abnehmen sollte - unter der Voraussetzung, daß die Probe im Zentrum des Detektors positioniert war. Die Ursache für  $F_{\text{geo}} > 1$  könnte in der experimentellen Methode liegen, mit der der Faktor bestimmt wurde.

Dies erfolgte in der Arbeit Schiffmanns [SC88], indem homogen aktivierte  $^{152}\text{Eu}$ -Präparate mit Durchmesser des Targets und als Punktpräparate vor dem Detektor positioniert wurden. Auch hier wurden echte Koinzidenzen bei der Auswertung nicht berücksichtigt. Durch die unterschiedliche Geometrie der benutzten  $^{152}\text{Eu}$ -Präparate sollte jedoch der Effekt der echten Koinzidenzen bei der ausgedehnten Probe

geringer sein, da das Ansprechvermögen axial nach außen abnimmt. Dadurch würde Schiffmanns  $F_{\text{geo}}$  systematisch erhöht. Hinzu kommt, daß Schiffmann  $F_{\text{geo}}$  1988 maß, sechs Jahre vor Abschluß der Schiekelschen Arbeit, und Schiekel  $F_{\text{geo}}$  nicht auf eine Veränderung hin überprüfte.

Zusammengefaßt läßt sich sagen, daß sowohl die nicht berücksichtigten echten Koinzidenzen als auch der Faktor  $F_{\text{geo}}$  zu systematisch zu niedrigen Produktionsraten führten, wodurch die Diskrepanz zwischen Schiekels Daten und denen dieser Arbeit erklärt wird. Zur Bestätigung dessen wurde ein von Schiekel gemessenes Eisentarget in dieser Arbeit nachgemessen und dessen Produktionsrate stimmt sehr gut mit den Modellrechnungen ein.

### 7.3.2 $^{44}\text{Ti}$ -Produktionsraten in Meteoroiden

Mit den mit den Dicktargetexperimenten validierten Anregungsfunktionen zur Erzeugung von  $^{44}\text{Ti}$  wurden nun die Produktionsraten in Meteoroiden berechnet. Abbildung 7.7 zeigt diese für die gewöhnlichen Chondrite, die H-, L-, und LL-Chondrite, die den größten Teil der Chondrite bilden.

Eisen ist das Haupttargetelement für die Produktion von  $^{44}\text{Ti}$ , da Titan nur zu etwa 0.07 % und Nickel nur zu etwa 1 bis 2 % in Meteoroiden enthalten ist. So wird im Zentrum eines H-Chondriten mit 40 cm Radius 90 % des  $^{44}\text{Ti}$  aus Eisen produziert. Die starke Variation des Eisengehaltes von 19.64 % für LL-Chondrite über 21.93 % für L-Chondrite bis hin zu 27.44 % für H-Chondrite [JA90] skaliert sich somit direkt auf die Absoluthöhe der Produktionsraten der einzelnen Meteoritenklassen. Diese liegt mit maximal etwa 1 dpm/kg sehr niedrig gegenüber denen anderer Nuklide wie etwa  $^{22}\text{Na}$  oder  $^{54}\text{Mn}$ . Dies ist ebenfalls eine Konsequenz der vorwiegenden Produktion aus Eisen, da die Wirkungsquerschnitte hierfür bei maximal 1-2 mb (Abbildung 5.3) liegen.

Die Hauptproduktion aus Eisen prägt die Signatur der Tiefenprofile als die eines Hochenergieproduktes. Ähnlich wie im Falle der Dicktargetproduktionsraten (Kapitel 7.3.1) wirkt sich auf die Form der Profile die mit größerem Radius zunehmende Abnahme der Flußdichte der primären Protonen sowie der begrenzte Anstieg der Flußdichten der hochenergetischen sekundären Teilchen zum Zentrum hin aus. Daraus ergeben sich für die Meteoroiden mit Radien  $R = 5 - 40$  cm flache, um nur etwa 4 % variierende Profile. Für die größeren Radien hingegen kommt die Absorption auch der sekundären Teilchen zum Zentrum hinzu, so daß die Produktionsraten mit zunehmender Tiefe absinken.

Neben den Tiefenprofilen selbst ist für die Aktivierungsrechnung nach Gleichung (7.2) die Abhängigkeit der  $^{44}\text{Ti}$ -Produktionsraten von  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$  interessant, die für H-Chondrite in Abbildung 7.8 gezeigt ist. Für Proben im Zentrum nehmen die Produktionsraten mit Änderung des Modulationsparameters von 650 auf 300 MeV einen Faktor 1.6, für Stücke an der Oberfläche einen Faktor 1.8 zu.

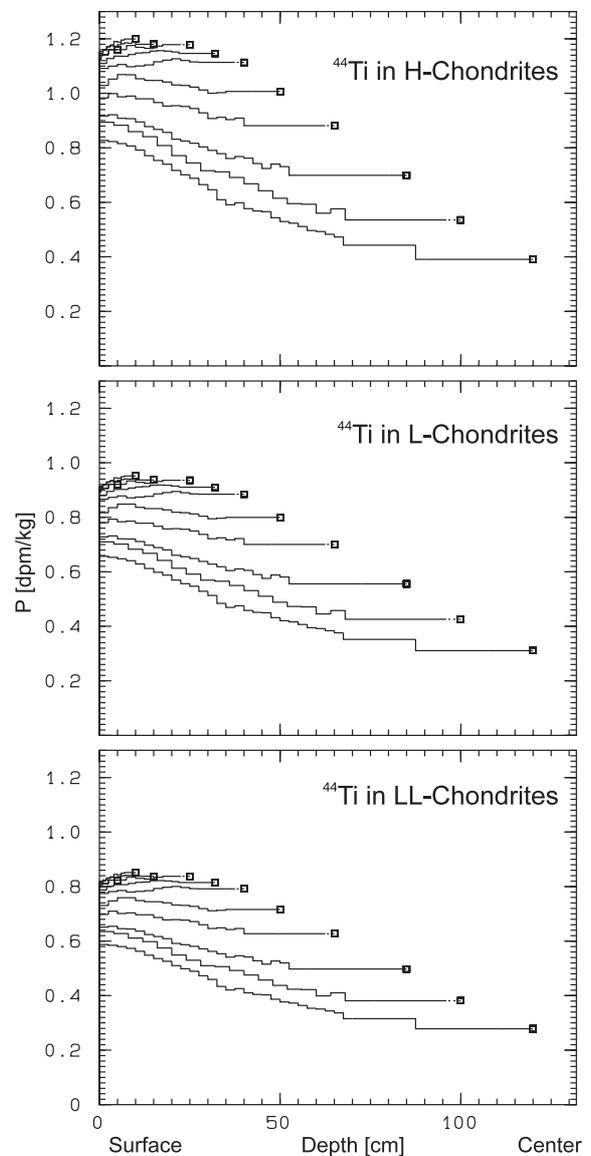


Abbildung 7.7 Größen- und tiefenabhängige Produktionsraten für  $^{44}\text{Ti}$  in H-, L- und LL-Chondriten.  $\varphi_{\text{GCR}}$  beträgt nach Kapitel 7.1.1  $\varphi_{\text{GCR}} = 4.06 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .

Dieser unterschiedliche Verlauf von  $P = P(\varphi(E > 10 \text{ MeV}))$  im Zentrum und an der Oberfläche erklärt sich dadurch, daß die mittlere Energie der spektralen Flußdichte der GCR-Protonen mit steigendem Modulationsparameter zunimmt. Dadurch werden bei höherem  $M$  mehr Sekundärteilchen im Meteoroiden produziert, deren Anteil an der Produktion gerade der ist, der zum Zentrum hin ansteigt. So ergibt sich die gezeigte Abhängigkeit für den Gradienten von der Oberflächen- zur Zentrumsproduktionsrate.

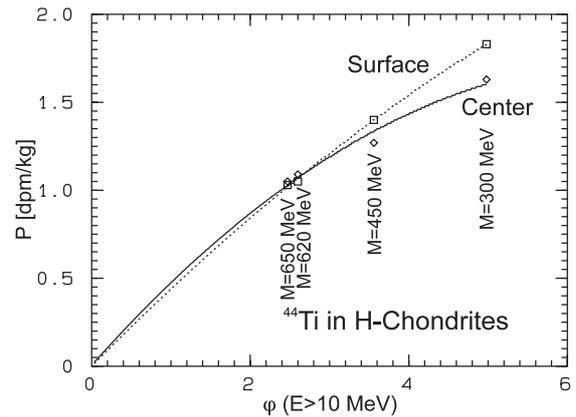


Abbildung 7.8  $^{44}\text{Ti}$ -Produktionsraten in H-Chondriten mit Radius  $R = 40 \text{ cm}$  in Abhängigkeit der GCR-Protonenflußdichte  $\varphi(E > 10 \text{ MeV})$ .

### 7.3.3 Vergleich der Modellrechnungen mit experimentellen Werten

Die im vorigen Kapitel vorgestellten Modellrechnungen werden nun mit in Meteoriten gemessenen Produktionsraten verglichen. Meßwerte hierzu liegen mit der Arbeit von Bonino et al. [BO95] vor, die neun Meteorite mit Fallzeitpunkten zwischen 1883 und 1992 auf  $^{44}\text{Ti}$  hin gemessen haben. Diese Meßwerte in Abhängigkeit des Fallzeitpunktes variieren entsprechend der solaren Aktivität des Gleissberg Zyklus und geben Aufschluß über die Variation der Flußdichte der GCR-Partikel über derartige Perioden. Damit wiederum werden Aussagen über das von der Sonnenaktivität abhängige Magnetfeld in der Heliosphäre möglich, das gerade die Flußdichte der GCR-Protonen bestimmt.

Um den Verlauf der Aktivitäten vom Fallzeitpunkt zu extrahieren, müssen die Aktivitäten unterschiedlicher Meteorite miteinander verglichen werden, wozu diese auf eine gemeinsame chemische Komposition und Abschirmtiefe zu beziehen sind. Als Bezugspunkt hierfür wurde der am 18.5.1988 gefallene H-Chondrit Torino gewählt, für den die chemische Komposition der Haupttargetelemente [BH89, BO95] sowie der präatmosphärische Radius vor dem Fall mit  $R = 24 \text{ cm}$  [BO95] vorliegt. Für das von Bonino et al. gemessene Stück wurde mit Hilfe von Cosmic Ray Tracks eine Abschirmtiefe von  $D = 16 \text{ cm}$  rekonstruiert. Auch für die anderen untersuchten Meteorite wurde die Abschirmtiefe der Probe  $D_{\text{Probe}}$  und der präatmosphärische Radius  $R_{\text{Meteoroid}}$  bestimmt [BH94A, BO95].

Der Vergleich der in den Meteoriten gemessenen  $^{44}\text{Ti}$ -Produktionsraten mit den Modellrechnungen erfolgt im folgenden in zwei Schritten. Zunächst werden für jeden Meteoriten die experimentellen Daten mit den mit  $(D_{\text{Probe}}, R_{\text{Meteoroid}})$  für  $t_{\text{Fall}}$  berechneten Werten verglichen, womit die Güte der Modellrechnungen beurteilt werden soll. Im zweiten Schritt werden die  $^{44}\text{Ti}$ -Produktionsraten dann auf die Parameter Torinos bezogen und den Aktivierungsrechnungen in Abhängigkeit von  $t_{\text{Fall}}$  gegenübergestellt.

Für die Modellrechnungen der einzelnen Meteorite wurde zunächst die Aktivierung nach Gleichung (7.4) und (7.2) für den  $R = 40 \text{ cm}$  Meteoroiden für die Tiefe  $D$  mit dem Verhältnis  $r = D_{\text{Probe}}/R_{\text{Meteoroid}}$  berechnet. Die damit nach Gleichung (7.3) abgeleitete Flußdichte diente in der Folge als Normierungsfaktor für die mit  $(D_{\text{Probe}}, R_{\text{Meteoroid}})$  und der chemischen Zusammensetzung des Meteoriten berechneten Produktionsrate.

Für die Aktivierungsrechnungen muß ein Modulationsparameter für das Maunder-Minimum gewählt werden, dem Zeitraum zwischen 1645 und 1700. Dieser soll für diese Zeit  $M = 100 \text{ MeV}$  betragen haben. Allerdings liegt der Zusammenhang  $P = P(\varphi(E > 10 \text{ MeV}))$  für  $^{44}\text{Ti}$  nur bis  $M = 300 \text{ MeV}$  vor und müßte für  $M = 100 \text{ MeV}$  extrapoliert werden. Wegen der damit verbundenen Unsicherheit wird darauf verzichtet und  $M = 300 \text{ MeV}$  wird für diese Periode benutzt. Der dadurch verursachte systematische Fehler klingt mit zunehmend späterem Falldatum ab und wird für den als ersten im Jahr 1883 gefallenen Meteoriten Alfianello auf maximal 5 % geschätzt.

Eine weitere wichtige Eingabe in die Rechnungen ist die chemische Komposition der Meteorite, die im Gegensatz zu Torino für die anderen Meteorite nur als Summe der Gehalte der Targetelemente Eisen und Nickel vorliegt [BO95]. Für die theoretische Berechnung ihrer Produktionsraten wurde daher aus dieser

Summe mit Hilfe des Nickelgehaltes der Chondritklasse der Eisenanteil berechnet. Die Eingabeparameter der Rechnungen und die berechneten Produktionsraten ( $P(^{44}\text{Ti}) - a$ ) sind in Tabelle 7.1 angeführt.

Tabelle 7.1 Berechnete (diese Arbeit) und gemessene [BO95]  $^{44}\text{Ti}$ -Produktionsraten. Eingetragen sind die *nicht* für Targetelementchemie und Abschirmtiefe korrigierten Werte (-a) sowie die dafür korrigierten (-b).  $P(^{44}\text{Ti}) - b$  (diese Arbeit) sind die unkorrigierten Werte  $P(^{44}\text{Ti}) - a$  aus [BO95], auf die der theoretische Abschirmkorrekturfaktor K angewendet wurde. Angegeben ist außerdem der Meteoritename, die Chondritenklasse, die Abschirmtiefen D, Radien R sowie die Eisen- (Fe) und Nickelgehalte (Ni). Die Rechnungen wurden mit der Halbwertszeit nach [AL90] durchgeführt ( $T_{1/2} = 66.6 \text{ a}$ ).

Meteorit, Klasse	D , R		Fe , Ni		$P(^{44}\text{Ti}) - a$		K	$P(^{44}\text{Ti}) - b$	
	[cm , cm]		[% , %]		BO95	diese Arbeit		BO95	diese Arbeit
					[dpm/kg]			[dpm/kg (Fe+Ni)]	
Alfianello, L	11.5,	35	21.71,	1.24	$1.1 \pm 0.2$	$0.953 \pm 0.124$	0.963	$4.7 \pm 0.9$	$5.0 \pm 0.9$
Lancon, H	11 ,	23	26.78,	1.74	$1.3 \pm 0.2$	$1.21 \pm 0.16$	0.997	$4.3 \pm 0.6$	$4.6 \pm 0.7$
Holbrook, L	17 ,	40	20.36,	1.24	$0.8 \pm 0.2$	$0.883 \pm 0.115$	0.950	$3.8 \pm 0.9$	$3.9 \pm 1.0$
Olivenza, LL	14.5,	85	19.19,	1.07	$1.2 \pm 0.2$	$0.665 \pm 0.086$	0.747	$5.8 \pm 1.2$	$7.9 \pm 1.3$
Rio Negro, L	14 ,	40	21.33,	1.24	$1.3 \pm 0.3$	$0.917 \pm 0.119$	0.940	$5.6 \pm 0.9$	$6.1 \pm 1.0$
Monze, L	11.6,	40	20.76,	1.24	$1.1 \pm 0.2$	$0.884 \pm 0.115$	0.937	$5.2 \pm 0.9$	$5.3 \pm 1.0$
Dhajala, H	24 ,	110	27.00,	1.74	$1.2 \pm 0.3$	$0.746 \pm 0.097$	0.621	$4.4 \pm 0.8$	$6.7 \pm 1.6$
Torino, H	16 ,	24	26.10,	1.16	$1.2 \pm 0.2$	$1.08 \pm 0.14$	=1	$4.2 \pm 0.5$	$4.2 \pm 0.7$
Mbale-A, L	11.6,	40	21.66,	1.24	$1.0 \pm 0.1$	$0.878 \pm 0.114$	0.937	$4.0 \pm 0.4$	$4.7 \pm 0.5$
Mbale-T, L	40 ,	40	21.66,	1.24	$0.8 \pm 0.1$	$0.864 \pm 0.112$	0.948	$4.0 \pm 0.4$	$3.7 \pm 0.5$

Der latitudinale Gradient der GCR-Flußdichte ändert sein Vorzeichen mit dem Wechsel der magnetischen Polarität der Sonne, so daß sein Einfluß für die Aktivierung des  $^{44}\text{Ti}$  gering sein sollte. Der radiale Gradient dagegen erhöht die berechneten Produktionsraten um zwei bis sechs Prozent, was nach Tabelle 7.1 die Übereinstimmung zwischen den berechneten und gemessenen Werten verbessert.

Die Beurteilung der Übereinstimmung der in Tabelle 7.1 angegebenen theoretischen und experimentellen Daten ist infolge der teilweise hohen Unsicherheiten schwierig. Berücksichtigt man die vor allem für die Meßwerte nicht unerheblichen Unsicherheiten, so überlappen sich die Unsicherheitsintervalle für alle Meteorite bis auf die großen Meteorite Olivenza und Dhajala. Die Diskrepanzen für die vier Meteorite Olivenza, Rio Negro, Monze und Dhajala sind gegenüber den anderen Meteoriten deutlich höher. Eine Erklärung hierfür bietet die folgende Diskussion der Produktionsraten  $P = P(t_{\text{Fall}})$  an.

Mit Ausnahme der vier genannten Meteorite weichen Theorie und Experiment um maximal einen Faktor 1.16 voneinander ab, so daß die Übereinstimmung für diese Meteorite als gut zu betrachten ist. Trotzdem muß die Unsicherheit der Meßwerte noch verringert werden, um eine eindeutige Aussage hinsichtlich der Güte der Beschreibung der experimentellen Daten durch die Theorie zu treffen.

Dies zeigen auch die beiden Meßwerte Mbales. Denn im Gegensatz zu den um 20 % differierenden Meßwerten innerhalb des Meteoriten mit  $R = 40 \text{ cm}$  wird von der Theorie entsprechend der flachen Profile in Abbildung 7.7 nur ein Unterschied für beide Positionen von 1.6 % vorausgesagt. Der gemessene Abfall von 20 % zum Zentrum ist für das Hochenergieprodukt nicht realistisch.

Zur Klärung der Diskrepanz für die beiden großen Meteorite Olivenza und Dhajala laufen noch weitere Untersuchungen. Dazu werden mehrere Stücke unterschiedlicher Tiefen in *einem* großen Meteoriten gemessen mit dem Ziel, die theoretisch vorausgesagte Variation der Produktionsraten auch experimentell nachzuweisen [BO98].

Nach diesem Vergleich von Theorie und Experiment für die einzelnen Meteorite wird nun die Variation der Produktionsraten in Abhängigkeit des Fallzeitpunktes untersucht. Hierfür ist mit dem Ziel der Vergleichbarkeit der Produktionsraten untereinander eine genaue Korrektur für die unterschiedlichen Abschirmtiefen unerlässlich. Dafür wurden die Verhältnisse  $K$  der berechneten Produktionsraten an den jeweiligen Positionen der Bruchstücke zur Produktionsrate von Torino für *eine* chemische Komposition gebildet. Unterschiedliche chemische Zusammensetzungen wirken sich auf die  $K$  nicht aus, da das  $^{44}\text{Ti}$  fast ausschließlich aus Eisen produziert wird und sich so identische Tiefenabhängigkeiten ergeben.

In Tabelle 7.1 sind als  $P(^{44}\text{Ti}) - b$  die experimentellen auf Chemie und Abschirmtiefe zum einen nach der Methode Boninos et al. [BO95] und zum anderen mit den Werten  $K$  dieser Arbeit korrigierten Produktionsraten eingetragen. Die Übereinstimmungen der Korrektur sind für die meisten Meteorite gut, jedoch sind größere Abweichungen wieder für die drei Meteorite Olivenza, Dhajala und Mbale zu bemerken.

Das von Bonino et al. [BO95] benutzte Modell zur Bestimmung der Korrekturfaktoren ist das von Bhandari [BH81] und ergibt für die beiden großen Meteorite zu kleine Korrekturen als die, die man vom physikalischen Modell dieser Arbeit erwartet. Außerdem wird von Bhandaris Modell auch die 20%ige Variation des Tiefenprofils Mbales vorhergesagt, die für das Hochenergieprodukt  $^{44}\text{Ti}$  unwahrscheinlich ist. Ein direkter Vergleich der Tiefenprofile beider Modelle zur Klärung der Diskrepanzen ist nicht möglich. Aus den Ergebnissen dieser Arbeit sind die Korrekturen von Bonino et al. [BO95] für diese drei Meteorite jedoch nicht physikalisch sinnvoll. Für die folgende Diskussion der Produktionsraten in Abhängigkeit von  $t_{\text{Fall}}$  werden daher die mit den  $K$  dieser Arbeit korrigierten Werte benutzt.

Abbildung 7.9 zeigt diese korrigierten Produktionsraten in Abhängigkeit des Fallzeitpunktes zusammen mit den theoretischen Aktivierungsrechnungen, die mit den Parametern Torinos durchgeführt wurden. Rechnungen mit den relativen Tiefen der anderen Meteorite bewirken nur Unterschiede von kleiner als 1% in den relativen Verläufen von  $P=P(t_{\text{Fall}})$ .

Zum Vergleich der Auswirkungen der Wahl des Modulationsparameters während des Maunder-Minimums sind zwei Rechnungen gezeigt, zum einen die mit der realistischeren Wahl des niedrigen Wertes  $M = 300$  MeV und zum anderen die mit dem mittleren Parameter  $M = 620$  MeV. Durch die hohe Produktionsrate für diese Periode bei Wahl von  $M=300$  MeV gegenüber den für den restlichen Zeitraum zur Aktivierung beitragenden Produktionsraten ergibt sich ein insgesamt abfallender Verlauf, der sich von der zweiten Berechnungsart jedoch nur um maximal 8% für das Jahr 1800 unterscheidet.

Wichtig zum Vergleich mit den experimentellen Werten sind die durch den Gleissberg Zyklus verursachten Strukturen in der gezeigten Abhängigkeit, wodurch sich Maxima für die Jahre um 1820 und 1930 ergeben. Zwischen dem Minimum für die Jahre um 1870 und dem Maximum bei etwa 1930 variieren die berechneten Produktionsraten durch den Gleissberg Zyklus um 3-4%. Diese Periodizität wird durch die kleineren etwa 1%igen Schwankungen überlagert, die durch den demgegenüber kurzperiodigen Schwabe Zyklus hervorgerufen werden.

Der Vergleich der Aktivierungsrechnungen mit den abschirmkorrigierten experimentellen Produktionsraten in Abbildung 7.9 ergibt innerhalb der Unsicherheiten eine gute Übereinstimmung, bis auf den

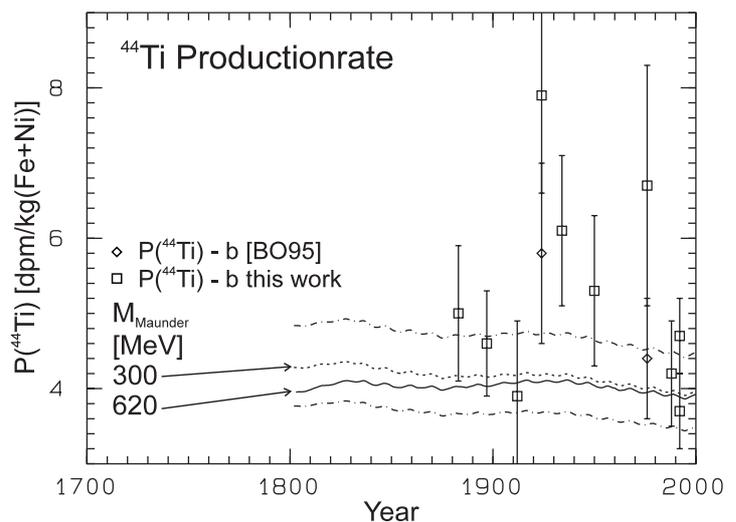


Abbildung 7.9 Abschirmkorrigierte Produktionsraten  $P(^{44}\text{Ti}) - b$  (Notation nach Tabelle 7.1) mit den zugehörigen Aktivierungsrechnungen. Für das Maunder-Minimum wurde mit  $M=620$  MeV sowie  $300$  MeV gerechnet. Für letztere Rechnung geben die zwei gestrichelten Linien die Grenzen der theoretischen Unsicherheit an.

Zeitraum des Maximums des Gleissberg Zyklus um das Jahr 1930. Für diesen Abschnitt sind die experimentellen Werte zwischen 0.5 und 2 dpm/kg(Fe+Ni) höher als die Rechnungen. Bonino et al. [BO95] schließen daraus auf der Basis *ihrer* korrigierten Daten auf eine erhöhte Flußdichte der GCR-Teilchen während des vorangehenden Minimums des Gleissberg Zyklus. Die gegenüber dieser Arbeit abweichenden Werte für Olivenza und Dhajala von Bonino et al. [BO95] sind in Abbildung 7.9 zusätzlich eingezeichnet. Mit den Datenpunkten von Bonino et al. [BO95] ergibt sich ein gegenüber den Rechnungen erhöhtes Maximum, das sich auf die Daten Olivenzas, Rio Negros und Monzes beschränkt und so die von Bonino et al. angegebene Interpretation rechtfertigt.

Die korrigierten Werte dieser Arbeit dagegen deuten mit den vier gegenüber den Rechnungen erhöhten Produktionsraten zwischen 1920 und 1980 einen etwas anderen Verlauf an, der kein eindeutiges Maximum mehr aufweist. Dies resultiert vor allem aus den hohen Abschirmkorrekturen für die beiden großen Meteorite Olivenza and Dhajala.

Bevor dieses Maximum abschließend durch eine erhöhte Flußdichte interpretiert wird, sollte in einem ersten Schritt zunächst der Vergleich eines gemessenen Tiefenprofils eines gut untersuchten Meteoriten mit den Modellrechnungen erfolgen. Hierfür bietet sich der große Meteorit Jilin [JO77] ( $R = 80$  cm) an, dessen  $^{44}\text{Ti}$ -Tiefenprofil von der Oberfläche zum Zentrum immerhin um etwa 0.2 dpm/kg abnehmen sollte. Für sinnvolle Aussagen muß daher die Meßunsicherheit unterhalb von 10 % verringert werden.

Erst wenn dieser Vergleich erfolgreich durchgeführt wurde, kann die gefundene Struktur als signifikant und validiert angesehen und entsprechend interpretiert werden. Ein solcher Vergleich ist insbesondere als Folge der Ergebnisse zur Produktion der kurzlebigen Nuklide (Kapitel 7.2.4) zwingend erforderlich.

### 7.3.4 Zusammenfassende Bewertung

In dieser Arbeit werden zum ersten Mal in unserer Arbeitsgruppe Modellrechnungen zur Produktion von  $^{44}\text{Ti}$  in Meteoroiden vorgestellt. Das Hochenergieprodukt  $^{44}\text{Ti}$  wird vorwiegend aus Eisen mit Produktionsraten im Bereich von  $\sim 1$  dpm/kg produziert. Für den Nachweis solch niedriger Aktivitäten in Meteoritenproben ist ein hoher experimenteller Aufwand nötig, so daß gemessene Produktionsraten Unsicherheiten im Bereich von 20 - 30 % haben.

Infolgedessen ist eine Beurteilung der Übereinstimmung von Theorie und Experiment schwierig. Dies wirkt sich auch auf die Untersuchung der in verschiedenen Meteoriten gemessenen Produktionsraten aus, die zum Ziel hat, die Aktivierung in Abhängigkeit vom Gleissberg Zyklus zu untersuchen. Sinnvollen Interpretationen hierzu sollten daher Messungen an einem gut untersuchten Meteoriten vorausgehen, die die Aussagekraft von Vergleichen zwischen Theorie und Experiment sicherstellen.

## 7.4 Die Produktion kosmogener Krypton-Isotope

Hat man die Produktionsraten einer möglichst breiten Palette kosmogener Nuklide in einer Meteoritenprobe gemessen - typischerweise zum Beispiel die Nuklide  $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{53}\text{Mn}$ ,  $^3\text{He}$ ,  $^{21,22}\text{Ne}$  - so wird durch Vergleich dieses Satzes von Produktionsraten mit theoretischen Modellrechnungen die Bestrahlungsgeschichte der Meteoritenprobe rekonstruiert. Das beinhaltet, Grenzen für den präatmosphärischen Radius des Meteoroiden und der Tiefe der gemessenen Probe in ihm festzulegen. Hilfreich hierfür sind die sogenannten Shieldingindikatoren.

Diese Indikatoren sind stark abhängig von der präatmosphärischen Größe des Meteoroiden und der Tiefe der gemessenen Probe in ihm. Trotzdem sind die Indikatoren nicht uneindeutig einer bestimmten Tiefe im Meteoroiden zugeordnet, so daß durch sie nur ein bestimmter Radius- und Tiefenbereich für die Probe festgelegt wird, das Shielding. Die Verhältnisse der Produktionsraten der Nuklide  $^{22}\text{Ne}$  und  $^{21}\text{Ne}$ ,  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$ , sowie von  $^3\text{He}$  und  $^{21}\text{Ne}$ ,  $^3\text{P}/^{21}\text{P}$ , haben sich als Shieldingindikatoren etabliert.

Diese Verhältnisse variieren stark mit der Größe und der Tiefe, da sie aus den Produktionsraten eines bevorzugt durch niederenergetische Teilchen produzierten Nuklides und denen eines durch vorwiegend

hochenergetische Partikel erzeugten Restkernes gebildet werden. Da die Ausbildung der sekundären Teilchenfelder von der Größe eines Körpers abhängt, ergibt sich die beschriebene Abhängigkeit.

Eine weitere interessante Größe für die Bestrahlungsgeschichte ist das Bestrahlungsalter  $T$  („Cosmic Ray Exposure Age“), das heißt, der Zeitraum, während dem der Meteoroid nach der Freisetzung vom Mutterkörper der kosmischen Strahlung ausgesetzt war. Zur Berechnung von  $T$  wird ein Paar eines Radionuklides  $R$  und eines stabilen Isotopes mit Produktionsraten  ${}^R P$  beziehungsweise  ${}^{stab} P$  benötigt. Ist das Radionuklid mit Zerfallskonstante  $\lambda$  in Sättigung, dann ergibt sich  $T$  zu

$$T = \lambda^{-1} \cdot ({}^R P / {}^{stab} P) \cdot ({}^R c / {}^{stab} c)^{-1} \tag{7.5}$$

Hierbei ist  ${}^R c$  und  ${}^{stab} c$  jeweils die Anzahl der gemessenen Kerne.

Aus den rekonstruierten Bestrahlungsszenarien lassen sich die eigentlich für die Meteoritik interessanten Aussagen ableiten - etwa über die Eigenschaften der Meteorite eines Fallgebietes, über die Charakteristik einer Meteoritenpopulation [NE96], oder mit Hilfe der Bestrahlungsalter  $T$  über Auswurfereignisse aus den Mutterkörpern [EU95]. Die Produktion des schweren Edelgases Krypton durch die kosmische Strahlung wird im Rahmen solcher Untersuchungen nicht immer selbstverständlich miteinbezogen. Liegen jedoch Meßwerte kosmogener Krypton-Isotope vor, so liefern sie aus den folgenden Gründen wertvolle zusätzliche Informationen.

Abbildung 7.10 zeigt mit einem schematischen Auszug aus der Nuklidkarte, daß gleich eine ganze Reihe stabiler und radioaktiver Krypton-Isotope erzeugt werden - insgesamt sechs stabile Isotope sowie das langlebige Radionuklid  ${}^{81}Kr$  ( $T_{1/2} = 0.21$  Ma [SE81]). Ihre Produktion erfolgt aus den im ppm-Bereich im Gestein vorkommenden Elementen Rubidium, Strontium, Yttrium und Zirkon mit Ordnungszahlen direkt über der des Kryptons. Infolge der geringen Gehalte der Targetelemente werden die Produktionsraten in  $10^{-12}$   $cm^3/(g\ Ma)$  bei Standarddruck und -temperatur (kurz  $10^{-12}$  cc STP/(g Ma)) angegeben.

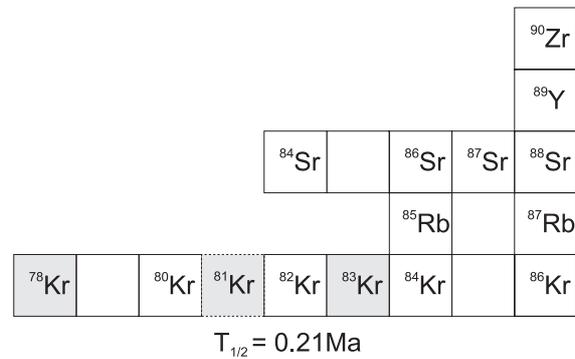


Abbildung 7.10 Schematischer Ausschnitt aus der Nuklidkarte. Die für die Anwendung in der Meteoritik wichtigen Isotope sind schraffiert.

Mit dem Radionuklid  ${}^{81}Kr$  und einem weiteren stabilen Krypton-Isotop - infolge seiner hohen Produktionsrate zumeist  ${}^{83}Kr$  - läßt sich nach Gleichung (7.5) das Bestrahlungsalter  $T$  mit der sogenannten  ${}^{81}Kr$ -Kr-Datierung [MA67] bestimmen. Im Gegensatz zu anderen Nuklidpaaren (etwa  ${}^{21}Ne$ - ${}^{26}Al$ -Datierung) werden hier nur Isotope *eines* Elementes verwendet. Dies hat den Vorteil, daß nur Isotopenverhältnisse und nicht absolute Konzentrationen gemessen werden müssen, was mit Edelgasmassenspektroskopie mit einer Unsicherheit von nur etwa 1 % möglich ist. Dies macht die  ${}^{81}Kr$ -Kr-Datierung zu einer sehr genauen und häufig verwendeten Methode [EU88, MA81].

Entscheidend für die erfolgreiche Anwendung dieser Datierung ist aber auch die genaue Kenntnis des Verhältnisses der Produktionsraten  ${}^{81}P / {}^{stab} P$ . Hierfür wurden bisher empirische Korrelationen [MA67, MA71, EU88] herangezogen. Mit den Modellrechnungen dieser Arbeit zur Produktion kosmogener Krypton-Isotope besteht die Möglichkeit, diese empirischen Beziehungen zu überprüfen und gegebenenfalls neu zu erstellen. Dadurch erhält die  ${}^{81}Kr$ -Kr-Datierung ein solides Fundament.

Neben dieser herausragenden Bedeutung kosmogener Kryptons für die Datierung ist außerdem hervorzuheben, daß mit dem Verhältnis  ${}^{78}P / {}^{83}P$  ein zusätzlicher Shieldingindikator zur Verfügung steht. Denn wie Abbildung 7.10 zeigt wird  ${}^{78}Kr$  durch die höhere Massenzahldifferenz zu den Targetisotopen in größerem Maße durch höherenergetische Teilchen produziert als  ${}^{83}Kr$ . Mit dem Indikator  ${}^{78}P / {}^{83}P$  können somit zusätzliche Korrelationen gebildet werden, die die Shieldingindikatoren mit Produktionsraten oder miteinander verknüpfen. So stehen weitere wichtige Hilfsmittel zur Verfügung für die Interpretation der in Meteoriten gemessenen Produktionsraten.

Da die Produktionsraten kosmogener Krypton-Isotope aus den angesprochenen Gründen ein wichtiges Werkzeug zur Interpretation von Produktionsraten in Meteoriten darstellen, wird in diesem Kapitel ausführlich auf sie eingegangen. Als Grundlage werden zunächst die Ergebnisse zur Modellierung der Produktionsraten der Krypton-Isotope in den Dicktargetexperimenten vorgestellt (Kapitel 7.4.1). Die dazu erstellten Anregungsfunktionen werden zur Berechnung kosmogener Krypton-Isotope in Meteoriten angewendet (Kapitel 7.4.2), die dann mit den gemessenen Produktionsraten der Meteorite Knyahinya (Kapitel 7.4.3) und St. Severin (Kapitel 7.4.4) verglichen werden.

### 7.4.1 Dicktargetproduktionsraten für die Krypton-Isotope

Krypton-Isotope wurden mit Edelgasmassenspektroskopie am CENBG/Bordeaux (Frankreich) für die Targetelemente Sr, Y und Zr in der Eisen- [GI97A, LY96] und für Rb, Sr, Y und Zr in der Gabbrokugel [GI92, GI93, GI94, LU93] gemessen. Eine kurze Beschreibung dieser beiden Experimente findet sich in Kapitel 7.3.1. Mit den neuen Messungen von Gilibert et al. [GI97A] in der Eisenkugel stand für die Krypton-Isotope für diese beiden Experimente erstmals eine vollständige Datenbasis an Dicktargetproduktionsraten als Grundlage für die Modellrechnungen zur Verfügung.

Für die theoretische Modellierung dieser Produktionsraten wurden zunächst die Anregungsfunktionen der Protonen-induzierten Reaktionen aus Rb, Sr, Y und Zr erstellt. Dazu wurde mit den Arbeiten von Gilibert et al. [GI98] (Kapitel 5.1.4) sowie von Regnier et al. [RE82] vorwiegend auf experimentelle Daten zurückgegriffen. Lücken in den Anregungsfunktionen wurden mit dem Code AREL [BL83, GL98A] berechneten Daten gefüllt, die an die experimentellen Wirkungsquerschnitte angepaßt wurden.

Die Anregungsfunktionen der Neutronen-induzierten Reaktionen wurden mit der in Kapitel 3.2 vorgestellten und in der Arbeit Leyas [LY96] beschriebenen Methode extrahiert. Wie schon im Falle des  $^{44}\text{Ti}$  wurde bei der Erstellung der *a priori*-Anregungsfunktionen im Niederenergetischen auf die mit AREL berechneten Daten zurückgegriffen, an die an einem geeigneten Schnittpunkt die mit dem Code HETC [CL88] berechneten Wirkungsquerschnitte angepaßt wurden.

Die Ergebnisse der theoretischen Modellierung der in den Dicktargetexperimenten gemessenen Produktionsraten zeigt Abbildung 7.11 exemplarisch anhand der Produktion von  $^{83}\text{Kr}$  aus Strontium, für die die gemessenen Produktionsraten beider Experimente simultan mit guter Qualität durch die Rechnungen wiedergegeben werden.

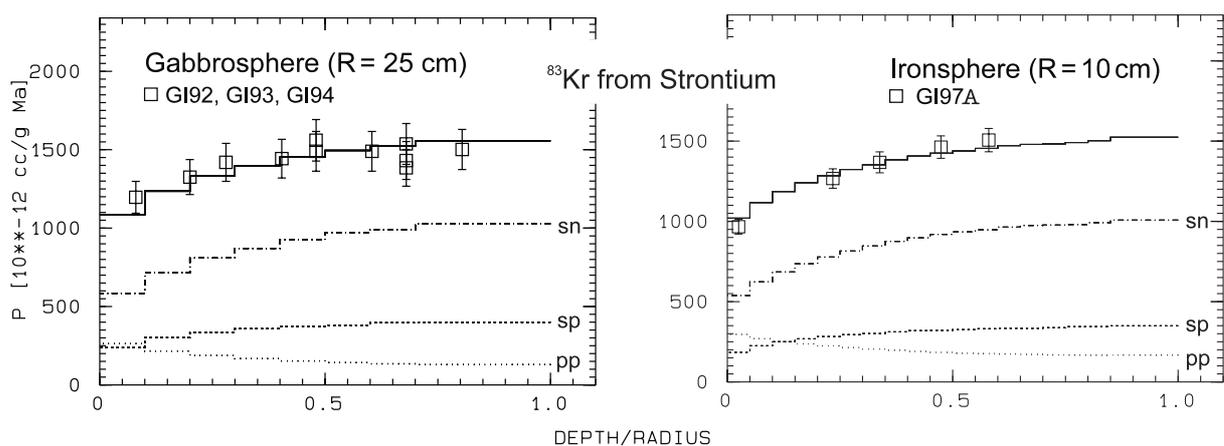


Abbildung 7.11  $^{83}\text{Kr}$ -Produktionsraten in der Gabbrokugel (links) und der Eisenkugel (rechts). Dargestellt sind die experimentellen Daten (Quadrate) sowie die theoretischen Modellrechnungen dazu (durchgezogene Linie). Für die Theorie sind außerdem die Anteile der sekundären Neutronen (sn) sowie der sekundären (sp) und der primären Protonen (pp) eingezeichnet.

Die Übereinstimmung für *beide* Experimente ist besonders hervorzuheben, da dies eine konsistente Absolutkalibrierung für die beiden zeitlich um immerhin fünf Jahre auseinander liegenden Meßreihen der Proben der Gabbro- und der Eisenkugel bedeutet. Die Absolutkalibrierung bei den Edelgasmessungen zeitlich konsistent zu halten, ist experimentell sehr aufwendig und verdeutlicht die hohe Qualität der experimentellen Daten.

Insgesamt wurden die Tiefenprofile der Isotope  $^{78,80,81,82,83,84}\text{Kr}$  konsistent modelliert, wobei die Abweichungen zwischen Theorie und Experiment zumeist innerhalb von 10 % lagen. In der Arbeit Leyas [LY96] wurde eine sehr viel größere Anzahl von Tiefenprofilen aus Dicktargetexperimenten als in dieser Arbeit theoretisch modelliert. Auf Grund der besseren Statistik in Leyas Arbeit [LY96] wird daher im folgenden die von Leya ermittelte Standardabweichung von 9 % für das tiefengemittelte Verhältnis der experimentellen und theoretischen Produktionsraten auch für die Krypton-Isotope angenommen.

Im Gegensatz zur guten Modellierung der Krypton-Produktionsraten für die Gabbro- und die Eisenkugel wurden mit den aus diesen Experimenten bestimmten Anregungsfunktionen die experimentellen Tiefenprofile der Krypton-Isotope [GI97B] aus Yttrium in der mit Protonen der Energie  $E_p = 600$  MeV bestrahlten Kugel mit Radius  $R = 15$  cm [DR87] nicht beschrieben. Hierfür lagen die theoretischen Werte gegenüber den experimentellen Profilen für die Isotope  $^{78,80,81,82,83,84}\text{Kr}$  um etwa 20 % höher. Eine mögliche Erklärung für diese Diskrepanz kann eine gegenüber den Messungen der anderen Experimente verschobene Absolutkalibrierung dieser Meßreihe sein.

Probleme treten auch bei der simultanen Modellierung der Produktionsraten von  $^{85,86}\text{Kr}$  in der Gabbro- und der Eisenkugel auf, da sich für diese beiden Isotope dabei Diskrepanzen zwischen Theorie und Experiment um bis zu einem Faktor zwei ergeben. Allerdings ist es infolge ihrer niedrigen Produktionsraten ( $< 10 \cdot 10^{-12}$  cc/(g Ma) aus Y und Zr sowie  $< 100 \cdot 10^{-12}$  cc/(g Ma) aus Sr) experimentell schwierig, diese Isotope mit einer hohen Genauigkeit zu messen. Dies manifestiert sich zum Teil in der großen Streuung der experimentellen Daten eines Tiefenprofils, so daß dann für diese Isotope die Modellierung nicht sinnvoll ist. Dies schränkt die Diskussion der Produktion kosmogener Krypton-Isotope in Meteoroiden jedoch nicht ein, da kosmogenes  $^{85,86}\text{Kr}$  in der Meteoritik nahezu nicht angewendet wird.

Neben der genauen Modellierung der Produktionsraten der Isotope ist auch die Güte der Beschreibung der Verhältnisse der Produktionsraten interessant, da diese zur Rekonstruktion der Bestrahlungsgeschichten von Meteoriten vorwiegend benötigt werden. Für die dafür relevanten Verhältnisse sind in Abbildung 7.12 die Mittelwerte der experimentellen zu den theoretischen Daten für jeweils ein Tiefenprofil wiedergegeben. Deren nicht eingezeichnete Standardabweichungen betragen maximal 3 %. Der Mittelwert der einzelnen Punkte in Abbildung 7.12 (Mean) zeigt, daß die experimentellen Verhältnisse über die Tiefenprofile gemittelt mit einem  $1\sigma$ -Fehler von 2 % durch die Theorie beschrieben werden.

Diese gegenüber den Produktionsraten deutlich bessere Beschreibung der experimentellen Verhältnisse der Produktionsraten durch die Theorie läßt sich darauf zurückführen, daß bei der Messung eines Targets *gleichzeitig* die Verhältnisse aller Isotope relativ zu einem Bezugsisotop gemessen werden, für das dann der Absolutwert bestimmt wird. Wenn daher eine experimentelle Produktionsrate gegenüber der Theorie zu hoch liegt, dann werden für dieses Target infolge ihrer Korrelation auch die Produktionsraten aller anderen Isotope etwa in gleichem Maße zur Theorie abweichen. Bei der Verhältnisbildung verringern sich die Abweichungen zwischen den theoretischen und experimentellen Produktionsraten dann entsprechend.

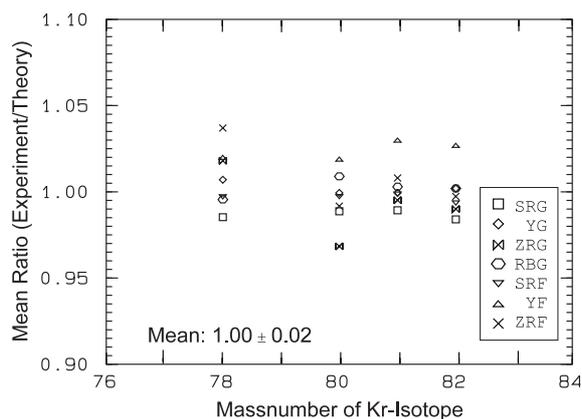


Abbildung 7.12 Über das Tiefenprofil gemitteltes Verhältnis von Experiment zu Theorie für die Verhältnisse  $^{AA}\text{P}/^{83}\text{P}$ ; die Massenzahl des Isotopes ist auf der Abzisse abgetragen. Die Standardabweichungen sind der Übersicht halber weggelassen. Die Legende unterscheidet die Tiefenprofile mit den ersten zwei Buchstaben nach Targetelement und mit dem dritten Zeichen nach Gabbro- (G) oder Eisenkugel (F).

## 7.4.2 Produktionsraten in Meteoroiden

Die mit den Dicktargetexperimenten validierten Anregungsfunktionen zur Produktion der Krypton-Isotope wurden zur Berechnung von Produktionsraten kosmogenen Kryptions in Meteoroiden durch die GCR angewendet. Infolge der fast identischen Spektrenformen der Teilchenfelder in den Dicktargetexperimenten und den Meteoroiden wird davon ausgegangen, daß die Produktionsraten in den Meteoroiden mit Unsicherheiten wiedergegeben werden, die vergleichbar denen der Dicktargetexperimente sind.

Die größten- und tiefenabhängigen Produktionsraten der für die Meteoritik wichtigsten Krypton-Isotope  $^{78,81,83}\text{Kr}$  sind für L-Chondrite in Abbildung 7.13 gezeigt. Vergleicht man die Produktion dieser drei Isotope, so ist die Erzeugung für  $^{83}\text{Kr}$  am größten und für  $^{78}\text{Kr}$  am geringsten. Anders ausgedrückt nimmt die Produktion der Krypton-Isotope mit zunehmenden Differenzen der Massenzahl des Produkts zu denen der Targetelemente ab.

Die hohe Produktion des  $^{83}\text{Kr}$  macht dieses leicht meßbar, was dazu führt, daß dieses zumeist als stabiles Nuklid für die  $^{81}\text{Kr}$ -Kr-Datierung angewendet wird. Wie schon in der Einleitung erwähnt wurde, ist für die Genauigkeit der  $^{81}\text{Kr}$ -Kr-Datierung von besonderer Bedeutung, daß die Verhältnisse der Produktionsraten von  $^{81}\text{Kr}$  zu denen von  $^{83}\text{Kr}$  - im folgenden kurz mit  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  abgekürzt - gut bekannt sind. In der Literatur sind daher zu deren Bestimmung eine Reihe empirischer Beziehungen [MA67, MA71, EU88] aufgestellt worden. Diese Korrelationen werden im folgenden mit den im Gegensatz dazu auf ein physikalisches Modell zurückgreifenden Rechnungen dieser Arbeit auf ihre Gültigkeit hin überprüft.

Die empirischen Korrelationen sind zusammen mit den Rechnungen dieser Arbeit in Abbildung 7.14 gezeigt. Die erste Korrelation zur Bestimmung des Verhältnisses  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  wurde von Marti [MA67] in der Originalarbeit zur  $^{81}\text{Kr}$ -Kr-Datierung aufgestellt. Er interpolierte die Gehalte von  $^{80}\text{Kr}$  und  $^{82}\text{Kr}$  für  $^{81}\text{Kr}$  basierend auf der Kryptonerzeugung aus Silber bei Bestrahlung mit 540 MeV Protonen [BI62] und benutzte für die Massenzahl  $A = 81$  eine Isobarenausbeute („isobaric fraction yield“) von  $g = 0.95 \pm 0.05$ . Martis empirische Korrelation weicht von der theoretischen um bis zu 10 % ab.

Dies erklärt sich durch Martis zu einfache Interpolation aus den Ergebnissen des einen Datenpunktes für Ag im Gegensatz zur Erzeugung der Krypton-Isotope aus den vier verschiedenen, zudem etwas leichteren Targetelementen Rb, Sr, Y und Zr in Meteoroiden. Zudem stand Marti [MA67] für die Interpolation nur ein Energiepunkt für die Erzeugung durch Protonen zur Verfügung, wohingegen in Meteoroiden die Produktion durch Neutronen- und Protonenfelder komplexer spektraler Flußdichten zu beachten ist.

Die  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  liegen auch für die von Marti und Lugmair [MA71] sowie von Eugster [EU88] aufgestellten empirischen Zusammenhänge gegenüber den theoretisch berechneten höher. Dies läßt sich damit erklären, daß Marti und Lugmair [MA71] auf die Relation von Marti [MA67] und Eugster [EU88] wiederum auf die beiden vorangegangenen [MA67,

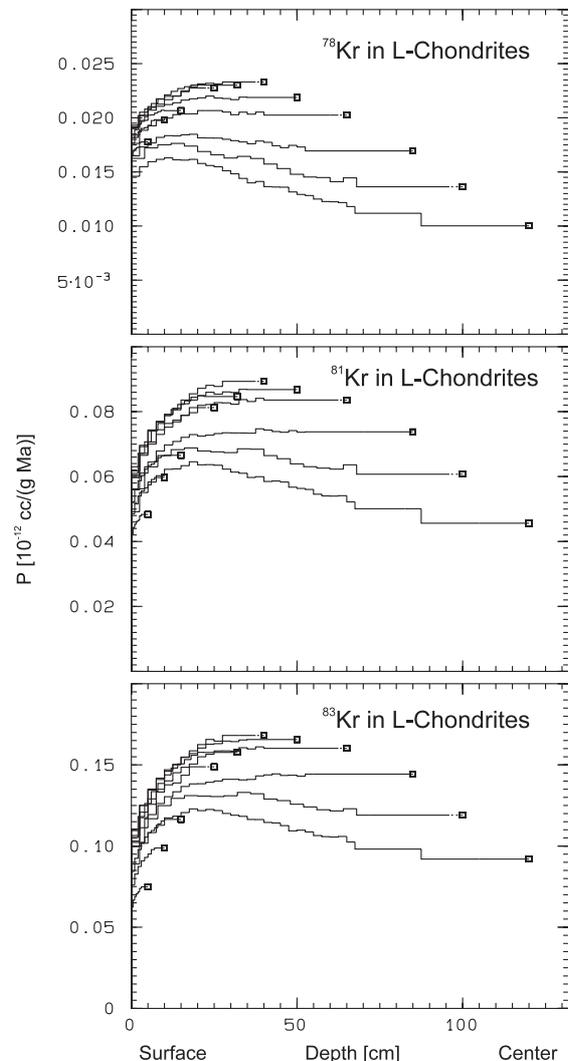


Abbildung 7.13 Tiefen- und größenabhängige  $^{78,81,83}\text{Kr}$ -Produktionsraten in L-Chondriten.  $\phi_{\text{GCR}}$  beträgt nach Kapitel 7.1.1  $\phi_{\text{GCR}} = 4.06 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .

MA71] zurückgreifen. So werden die Diskrepanzen aller empirischer Relationen gegenüber der Theorie auf die unzureichende Interpolation von Marti [MA67] zurückgeführt.

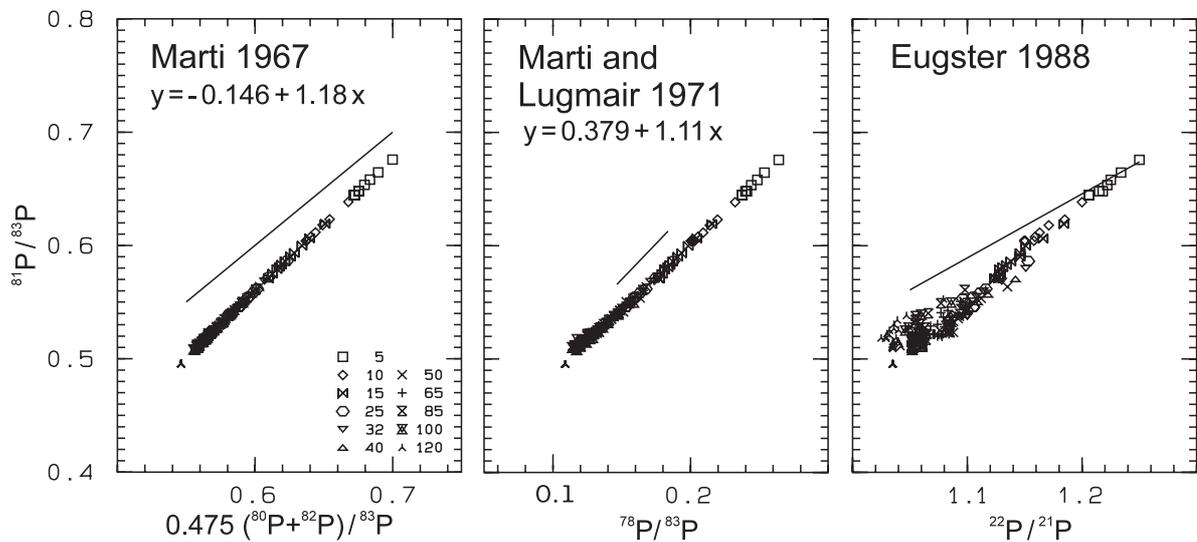


Abbildung 7.14 Empirische [MA67, MA71, EU88] (durchgezogene Linien) und theoretische (Symbole) Korrelationen, die in der  $^{81}\text{Kr}$ - $\text{Kr}$ -Datierung angewendet werden. Die Zahlenwerte zu den Symbolen geben den Radius des Meteoroiden in cm an. Für die mit linearer Regression erhaltenen Gleichungen bezieht sich  $x$  und  $y$  jeweils auf die an den Achsen der Korrelationen angegebenen Größen. Die Verhältnisse  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  wurden der Arbeit Leyas [LY96] entnommen. Alle Verhältnisse wurden für L-Chondritische Chemie gebildet.

Für die praktische Anwendung der  $^{81}\text{Kr}$ - $\text{Kr}$ -Datierung zur Berechnung der Bestrahlungsalter  $^{81}\text{T}$  ist die Berechnung des Verhältnisses  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  mit Hilfe der in Abbildung 7.14 angegebenen theoretischen Regressionen vorzuziehen. Dies bedeutet eine Verringerung von  $^{81}\text{T}$  um 5 bis 10 %, was weitreichende Konsequenzen hat. Denn zum Beispiel die von Eugster [EU88] veröffentlichten und in der Praxis häufig angewendeten Produktionsraten in Abhängigkeit von  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  sind auf die  $^{81}\text{T}$  bezogen. Eine Renormierung der  $^{81}\text{T}$  würde somit auch alle Produktionsraten Eugsters [EU88] und somit die damit durchgeführten Interpretationen kosmogener Nuklide in Meteoriten hinsichtlich der Bestrahlungsszenarios betreffen. Die von Eugster [EU88] bestimmten Korrelationen der Produktionsraten der Nuklide  $^{78,81,83}\text{Kr}$  in Abhängigkeit von  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  werden somit im folgenden nicht weiter diskutiert, da auch für ihre Erstellung auf die Gleichungen von Marti [MA67] sowie von Marti und Lugmair [MA71] zurückgegriffen wurde. Dagegen erhielt Eugster [EU88] den Zusammenhang beider Shieldingindikatoren  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  und  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  durch Auftragen der reinen Meßwerte gegeneinander.

Warum sich das Verhältnis  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  als Shieldingindikator eignet, liest man aus Abbildung 7.13 ab: Die Tiefenprofile für die Erzeugung von  $^{83}\text{Kr}$  steigen zum Zentrum hin stärker an als dies für  $^{78}\text{Kr}$  der Fall ist. So nehmen beispielsweise für  $^{83}\text{Kr}$  die Produktionsraten im Meteoroiden mit  $R = 40$  cm von der Oberfläche zum Zentrum um einen Faktor 1.5 zu, für  $^{78}\text{Kr}$  jedoch nur um einen Faktor 1.2. Dies zeigt deutlich, daß  $^{83}\text{Kr}$  ein Produkt ist, das stärker durch niederenergetische Teilchen gebildet wird als  $^{78}\text{Kr}$ , so daß das Verhältnis der Produktionsraten beider Nuklide größen- und tiefenabhängig ist. (Die Phänomenologie der Nieder- und Hochenergieprodukte wurde bereits in Kapitel 7.3.1 diskutiert.)

Die in Abbildung 7.15 gezeigte Auftragung beider Shieldingindikatoren  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  und  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  gegeneinander weist somit eine lineare Korrelation auf. Neben Eugsters [EU88] empirischen Zusammenhang ist auch der von Lavielle und Marti [LA87] eingezeichnet, der mit Eugsters sehr gut übereinstimmt. Die Geraden beider Arbeiten [EU88, LA87] werden durch die Modellrechnungen für die größeren Meteoroiden ( $R \geq 25$  cm) - dem Bereich des Verhältnisses  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  zwischen 1.05 und  $\approx 1.13$  - sehr gut beschrieben. Dagegen zeigt sich für die kleineren Meteoroiden ( $R \leq 15$  cm), daß die theoretischen Daten für  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P} \geq 1.13$  von beiden empirischen Korrelationen abweichen. Diese Abweichung zu *beiden* Geraden bei ge-

ringem Shieldings ist allerdings nicht verwunderlich, da jeweils drei der fünf Meteorite mit  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P} > 1.18$  in beiden Arbeiten [EU88, LA87] identisch sind.

Interpretiert man diesen Effekt dahingehend, daß die  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  der empirischen Zusammenhänge gegenüber den berechneten höher liegen, so sind für die Diskrepanzen SCR-Effekte eine plausible Erklärung. Denn Meßwerte mit hohen  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  stammen sehr wahrscheinlich aus Meteoroiden kleiner Radien, in denen die Erzeugung kosmogener Nuklide durch die SCR nicht vernachlässigt werden darf, die eine Erhöhung der  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  gegenüber der reinen GCR-Produktion bewirkt. Da die theoretischen Rechnungen für  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  jedoch nur die Erzeugung durch die GCR beinhalten, liegen sie gegenüber Meßwerten mit SCR-Anteilen niedriger.

Die vorgestellte Überprüfung der empirischen Korrelationen mit der Theorie ist wesentlich. Sie hat Unzulänglichkeiten der empirischen Zusammenhänge aufgezeigt und die Modellrechnungen für die großen Meteorite bestätigt. Eine genaue Untersuchung der Qualität der Beschreibung experimenteller Produktionsraten durch die Theorie ist jedoch nur bei der Analyse der Meßwerte von Meteoriten gut bekannter Bestrahlungsgeschichte möglich. Ein solcher Meteorit ist Knyahinya, für den im folgenden die Modellierung vorgestellt wird.

### 7.4.3 Kosmogenes Krypton in Knyahinya

Der L-Chondrit Knyahinya war Gegenstand umfangreicher Untersuchungen hinsichtlich seiner Expositionsgeschichte. In der Arbeit von Graf et al. [GR90A] wurden für Knyahinya Edelgase (He, Ne, Ar), langlebige Nuklide ( $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{53}\text{Mn}$ ) sowie Cosmic Ray Tracks gemessen. Damit wurde sein mittlerer präatmosphärischer Radius zu  $R = 45$  cm mit Abweichungen von der sphärischen Form um  $\pm 5$  cm sowie das Bestrahlungsalter zu  $T = 40.5$  Ma bestimmt [GR90A].

Mit der Arbeit von Lavielle et al. [LA97] liegen für Knyahinya Messungen kosmogener Kryptons an fünf Proben vor, für die aus der Arbeit von Graf et al. [GR90A] die Tiefen bekannt sind. Der Vergleich der Modellrechnungen mit diesen Werten bietet daher einen wertvollen Test, wie gut die Rechnungen Produktionsraten kosmogener Kryptons in Meteoriten beschreiben.

Als erster Punkt zur Expositionsgeschichte wird im folgenden das Bestrahlungsalter  $T$  diskutiert. Zu dessen Berechnung wurde der von Marti [MA67] aufgestellte Zusammenhang nicht angewendet, in den nur die spallogenen Produktionsraten der Isotope  $^{80,82}\text{Kr}$  eingehen. Denn zur Erzeugung von  $^{80,82}\text{Kr}$  in Knyahinya tragen auch  $(n,\gamma)$ -Reaktionen am  $^{80,82}\text{Br}$  bei [NE94], so daß die Voraussetzung zur Anwendung dieser Gleichung nicht mehr gegeben ist.

Tabelle 7.2 gibt daher nur die Alter für die fünf Proben an, wie sie

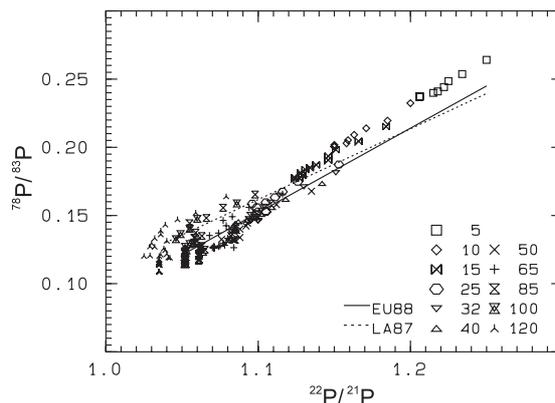


Abbildung 7.15 Empirische [EU88, LA87] und theoretische Korrelation der Shieldingindikatoren  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  und  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  gegeneinander. Die theoretischen Verhältnisse wurden für L-Chondritische Chemie gebildet. Die Zahlenwerte zu den Symbolen geben den Radius des Meteoroiden in cm an. Die Verhältnisse  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  wurden der Arbeit Leyas [LY96] entnommen.

Tabelle 7.2 Expositionsalter  $T$  für Knyahinya berechnet in dieser Arbeit (this - oben, siehe Text für weitere Erläuterung) und aus der Literatur (unten), für die in Klammern das zur Berechnung benutzte Isotop angegeben ist.

Probenname	$T$ [Ma]
KN16 (this)	$37.1 \pm 1.0$
KN105 (this)	$35.8 \pm 1.3$
KN106 (this)	$35.2 \pm 1.0$
KN22 (this)	$36.2 \pm 1.0$
KN103 (this)	$35.7 \pm 0.8$
Mittelwert (this) <sup>2</sup>	$36.0 \pm 0.7$
[NI80] ( $^{21}\text{Ne}$ ) <sup>1</sup>	$40.3 \pm 0.3$
[MA71] <sup>2</sup>	$37.6 \pm 0.8$
[EU88] ( $^{21}\text{Ne}$ ) <sup>1</sup>	$37.7 \pm 0.3$
[GR90A] ( $^{21}\text{Ne}$ )	$40.5 \pm 0.2$
[LY98B] ( $^{21}\text{Ne}$ ) <sup>1</sup>	$38.03 \pm 0.3$

Unsicherheit ist  
<sup>1</sup> Standardabweichung von  $^{21}\text{c}$   
<sup>2</sup> Standardabweichung des Mittelwertes

mit der theoretischen Geraden  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  in Abhängigkeit von  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  (Abbildung 7.14) und Gleichung (7.5) berechnet wurden (this). Zur Bildung ihrer Unsicherheiten wurde nur die Unsicherheit des  $^{81}\text{C}/^{83}\text{C}$ -Verhältnisses der Konzentrationen aus [LA97] berücksichtigt. Der Mittelwert der Bestrahlungsalter der fünf Proben ergibt sich zu  $T = 36 \text{ Ma}$  und liegt verglichen mit Literaturdaten um 5 bis 10 % niedriger.

Diese Diskrepanzen relativieren sich jedoch, wenn man die im letzten Kapitel angesprochenen Abweichungen zwischen den empirischen und theoretischen Korrelationen in Abbildung 7.14 betrachtet. Damit erklärt sich zwanglos das höhere Alter nach Marti und Lugmair [MA71].

Das Bestrahlungsalter nach Nishiizumi et al. [NI80] wurde mit der in [NI80] angegebenen empirischen Korrelation für die Produktionsrate  $^{21}\text{P}$  berechnet. Diese wurde mit Hilfe der  $^{81}\text{Kr}$ -Kr-Datierung [MA67] aufgestellt, so daß bei Renormierung auf die Beziehung dieser Arbeit die Produktionsraten  $^{21}\text{P}$  von [NI80] zunehmen. Demgemäß würde sich aus dem  $^{21}\text{Ne}$ -Gehalt  $^{21}\text{C}$  Knyahinyas dann nach  $^{21}\text{C} = ^{21}\text{P} \cdot T$  ein geringeres Alter ergeben. Das gleiche gilt für das Alter nach Eugster [EU88], der seine  $^{21}\text{P}$  auf  $^{81}\text{T}$ -Alter nach [MA67, MA71] bezieht.

Da Graf et al. [GR90A] ihr Modell auf die Bestrahlungsalter von Eugster [EU88] beziehen, würde auch hier eine Renormierung auf die Rechnungen dieser Arbeit eine Erniedrigung des Alters von Graf et al. [GR90A] bewirken. Zusammengefaßt bedeutet dies, daß die Normierung auf die Simulationsrechnungen dieser Arbeit die Literaturalter [NI80, MA71, EU88, GR90A] um 5 bis 10 % erniedrigt, die dann gut mit dem Alter dieser Arbeit von 36 Ma übereinstimmen.

Diese Renormierung erklärt jedoch nicht die Diskrepanz zu dem um 6 % höher liegenden Alter Leyas [LY98B], da dessen Alter auf Rechnungen für  $^{21}\text{P}$  mit demselben physikalischen Modell wie in dieser Arbeit zurückgeht. Eine Erklärung für diese Abweichung wurde nicht gefunden. In Anbetracht der Unsicherheiten von 9 % der berechneten Produktionsraten zeigt dieses Ergebnis jedoch, daß die Bestrahlungsalter auf der Basis des benutzten physikalischen Modells für verschiedene Nuklide im Rahmen der Unsicherheiten zusammenfallen.

Abbildung 7.16 zeigt die in Knyahinya gemessenen Tiefenprofile [LA97] mit der Modellierung für einen Radius von  $R = 45 \text{ cm}$  und dem Bestrahlungsalter von  $T = 36 \text{ Ma}$ . Für alle drei Nuklide zeigt sich eine gute Übereinstimmung für Theorie und Experiment - auch für das von  $T$  unabhängige, sich in Sättigung befindliche radioaktive  $^{81}\text{Kr}$ . Allerdings ergibt sich aus dem Least-Squares-Adjustment (LSA) der theoretischen Produktionsraten von  $^{78,83}\text{Kr}$  an die fünf gemessenen Gehalte ein leicht geringeres Bestrahlungsalter von  $T = 35.0 \pm 0.5 \text{ Ma}$  für  $^{78}\text{Kr}$  und  $T = 35.1 \pm 0.4 \text{ Ma}$  für  $^{83}\text{Kr}$  (Unsicherheiten aus LSA beinhalten die experimentellen Unsicherheiten aus [LA97]). Dies zeigt sich auch in Abbildung 7.16, in der die theoretischen Profile von  $^{78,83}\text{Kr}$  gegenüber den experimentellen Daten leicht zu hoch liegen.

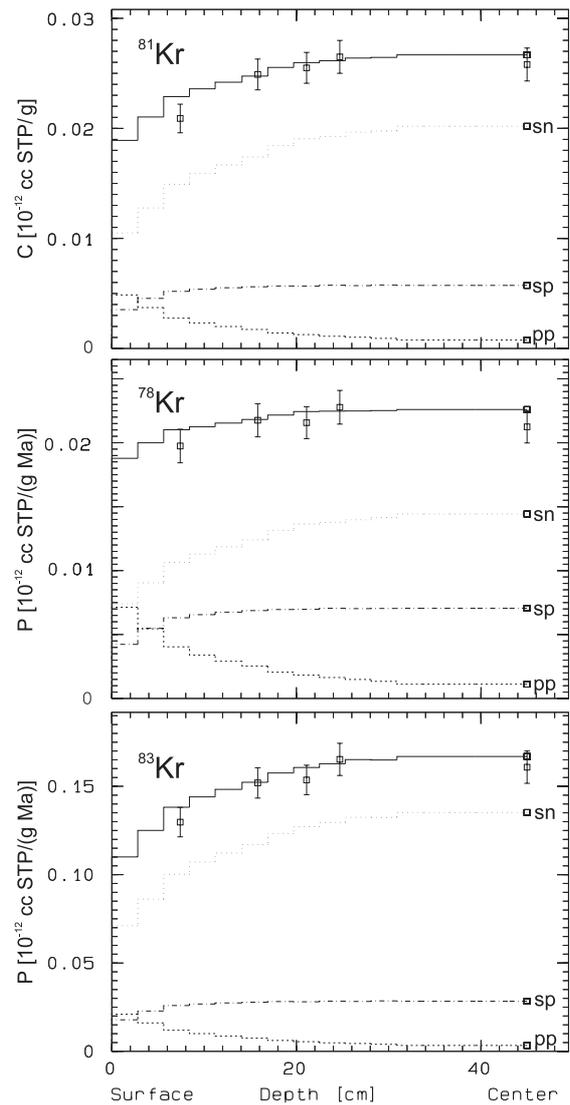


Abbildung 7.16 Experimentelle [LA97] und theoretische (durchgezogene Linie) Gehalte für  $^{81}\text{Kr}$  beziehungsweise Produktionsraten für  $^{78,83}\text{Kr}$ . Die Daten sind für einen Radius von  $R = 45 \text{ cm}$  und das Bestrahlungsalter von  $T = 36 \text{ Ma}$  eingezeichnet. Für die theoretischen Produktionsraten sind außerdem die Anteile der sekundären Neutronen (sn) und Protonen (sp) sowie der primären Protonen (pp) angegeben.  $\phi_{\text{GCR}}$  beträgt nach Kapitel 7.1.1  $\phi_{\text{GCR}} = 4.06 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .

Bevorzugt wird aber das Bestrahlungsalter  $T = 36$  Ma verwendet, weil dies mit den Verhältnissen berechnet wurde, die sowohl experimentell als auch theoretisch mit geringeren Unsicherheiten behaftet sind als die absoluten Gehalte. Die Diskrepanz zwischen dem Bestrahlungsalter berechnet mit den Verhältnissen ( $T = 36$  Ma) und denen basierend auf dem LSA der Produktionsraten an die Gehalte ( $T = 35.1$  und  $35.0$  Ma) von  $2.7\%$  liegt jedoch innerhalb der Unsicherheiten. Denn die jeweils angegebenen Unsicherheiten dieser Alter beinhalten bisher nur die experimentellen Unsicherheiten aus [LA97].

Zu berücksichtigen ist jedoch zusätzlich zum einen die Unsicherheit von  $3\%$  (siehe unten) für die theoretischen Verhältnisse, die gegenüber den Dicktargetexperimenten eine zusätzliche Unsicherheit von zwei Prozent bei Berechnung der Verhältnisse in Meteoroiden beinhaltet. Zum anderen muß die Unsicherheit von  $9\%$  einkalkuliert werden, mit der die Produktionsraten in den Meteoroiden berechnet werden. Unter Beachtung dessen sind die mit den zwei Methoden ermittelten Bestrahlungsalter innerhalb der Unsicherheiten in sich konsistent.

Die mit  $T = 36$  Ma berechneten Verhältnisse  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  sowie  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  sind in Abbildung 7.17 in Abhängigkeit der Tiefe und des Verhältnisses  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  eingezeichnet. Innerhalb der theoretischen und experimentellen Unsicherheiten werden die experimentellen Daten [LA97] für beide Auftragungsarten sehr gut durch die Theorie beschrieben. Die Tiefenprofile der Verhältnisse werden innerhalb von  $3\%$  durch die Rechnungen wiedergegeben.

Das experimentelle Verhältnis  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  verläuft in Abhängigkeit der Tiefe infolge der geringen Massenzahlendifferenz zwischen  $^{81}\text{Kr}$  und  $^{83}\text{Kr}$  nahezu konstant, was durch die Rechnungen bestätigt wird: Die theoretischen  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  fallen über den relevanten Tiefenbereich nur um  $4\%$  ab. Demgegenüber variiert der Shieldingindikator  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  mit einer Abnahme von  $26\%$  von der Oberfläche zum Zentrum erwartungsgemäß stärker mit der Tiefe.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die experimentellen Produktionsraten der Krypton-Isotope Knyahinyas sehr gut durch die Modellrechnungen beschrieben werden. Neben Knyahinya wurden bisher

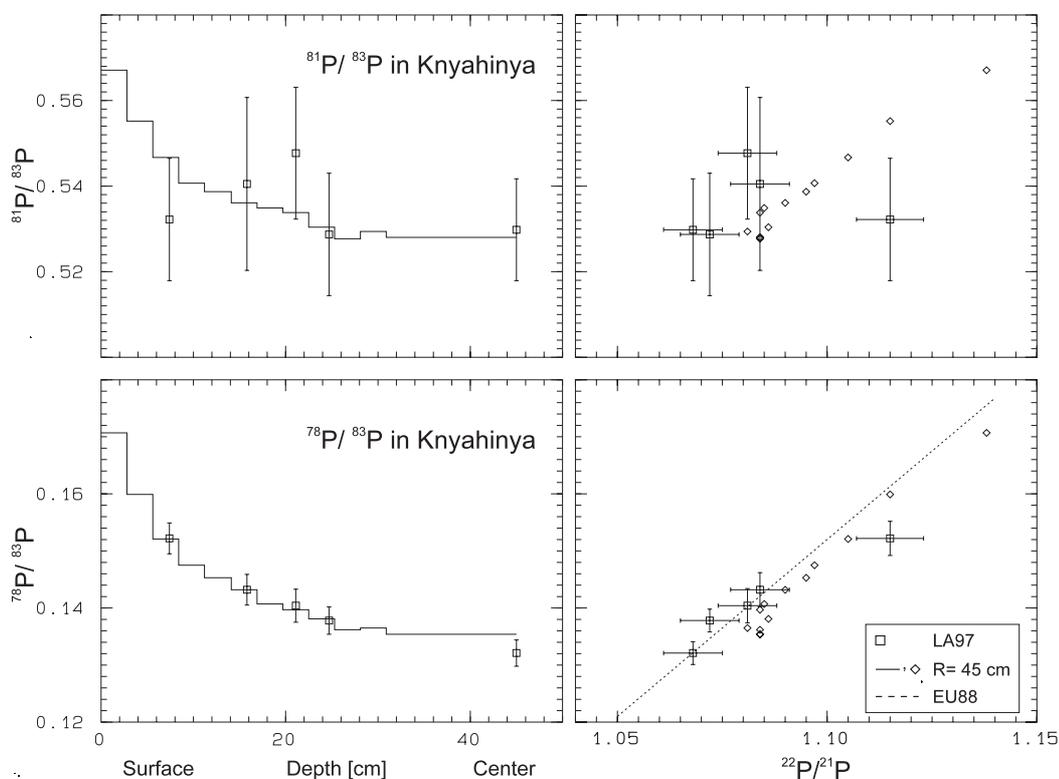


Abbildung 7.17 Experimentelle [LA97] und theoretische Verhältnisse  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  (oben) und  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  (unten) aufgetragen über die Tiefe im Meteoroiden (links) und über den Shieldingindikator  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$ . Die Verhältnisse  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  wurden der Arbeit Leyas [LY96] entnommen. Die Daten sind für das Bestrahlungsalter von  $T = 36$  Ma und einen Radius von  $R = 45$  cm eingezeichnet.

nur mit Proben St. Severins Tiefenprofile kosmogener Krypton-Isotope gemessen. Kompletierend zum Test der Modellrechnungen an Knyahinya wird daher im folgenden die Modellierung kosmogener Kryptons im ebenfalls gut erforschten Meteoriten St. Severin dargestellt.

#### 7.4.4 Kosmogenes Krypton in St. Severin

Wie Knyahinya ist auch der LL-Chondrit St. Severin bezüglich seiner Expositionsgeschichte sehr gut untersucht. Die Form des Meteoriten wurde von Graf [GR88] als Ellipsoid mit den Halbachsen  $a, b, c = 40, 20, 25$  cm angegeben. In dieser Arbeit wurde eine Kugel mit dem effektiven Radius  $R_{\text{eff}} = 27$  cm für die Rechnungen benutzt, die dasselbe Volumen besitzt wie das Ellipsoid.

Kosmogenes Krypton wurde von Lavielle und Marti [LA87] in zehn Proben des Cores AIII gemessen. Lavielle und Marti geben als Besonderheit an, daß das Haupttargetelement Rb nur eine sehr geringe Konzentration von 0.62 ppm in St. Severin hat - im Vergleich zu 2.3 ppm [MA79] in LL-Chondriten. Daher wurde für die Simulationsrechnungen die gegenüber den LL-Chondriten für Rb abgewandelte Chemie von (in [ppm]: Rb = 0.62, Sr = 11.1, Y = 2.0, Zr = 5.9) benutzt. Außerdem lag eine Messung der Targetelemente für die Probe AIII10 vor (in [ppm]: Rb = 2.3, Sr = 12.8, Y = 1.0, Zr = 6.1) [JO95].

Zunächst wird im folgenden das Bestrahlungsalter St. Severins diskutiert. Da kein  $^{81}\text{Kr}$  gemessen wurde, wurde das Alter mit LSA der Produktionsraten für  $^{78,83}\text{Kr}$  an die Meßwerte der vier tiefsten Proben berechnet. Außerdem wurde mit der mit der chemischen Zusammensetzung von [JO95] berechneten  $^{83}\text{Kr}$ -Produktionsrate für die Probe AIII10 das Alter bestimmt. Die Ergebnisse hierzu sowie die in der Literatur veröffentlichten Alter sind in Tabelle 7.3 eingetragen.

Das Alter dieser Arbeit mit  $T = 15.6$  Ma liegt bis zu 8 % unterhalb der in der Literatur angegebenen  $T$ . Auch hier würde eine Renormierung der  $^{81}\text{Kr}$ -Kr-Datierung die Alter von [GR90B, EU88, NI80] um 5 bis 10 % absenken, so daß sich wie für Knyahinya eine gute Übereinstimmung der Alter ergibt.

Allerdings sind die Alter für  $^{78,83}\text{Kr}$  mit LSA nur an die Werte der vier innersten Proben berechnet worden. Den Grund dafür zeigt Abbildung 7.18, in der das mit  $T = 16.0$  Ma berechnete Tiefenprofil der  $^{83}\text{Kr}$ -Produktionsraten im Vergleich zu den experimentellen Daten eingezeichnet ist. Die Werte der oberflächennahen Proben zeigen eine starke Streuung, die mit dem mit einer Chemie berechneten Tiefenprofil nicht zu erklären ist. Daher wurde das LSA nur an die inneren Daten vorgenommen, die einen auch theoretisch erwarteten konstanten Verlauf im Inneren des Meteoroiden andeuten.

Ein möglicher Grund für diese Streuung ist, daß die Gehalte der Haupttargetelemente eine entsprechende Schwankung zeigen. Während Sr, Y und Zr nur Variationen im Bereich von 10 % zeigen [LA87, MA79], unterscheiden sich die Rb-Konzentrationen für LL-Chondrite immerhin um einen Faktor zehn [MA79]. Dies macht die Modellierung kosmogener Kryptons in Meteoriten unsicher und problematisch - insbesondere im Falle St. Severins. So weicht beispielsweise das für die Probe AIII10 berechnete  $T$  um 15 % von dem Mittelwert des Alters nach LSA nach unten ab, obwohl es mit der für AIII10 gemessenen Chemie berechnet wurde. Auch hängt das mit LSA berechnete Alter entscheidend von der gewählten Rb-Konzentration ab (Rb = 0.62 ppm). Denn  $^{83}\text{P}$  ist für normale LL-Chondrit Chemie (Rb = 2.3 ppm) um 20 %

Tabelle 7.3 Expositionsalter  $T$  für St. Severin berechnet in dieser Arbeit (this - oben, siehe Text für weitere Erläuterung). Die Unsicherheiten für this beinhalten die experimentellen aus [LA87]. Im unteren Teil sind die  $^{21}\text{Ne}$ -Alter aus der Literatur eingetragen.

Methode		$T$ [Ma]
$^{83}\text{Kr}$ -LSA	(this)	$16.0 \pm 0.3$
$^{78}\text{Kr}$ -LSA	(this)	$15.1 \pm 0.2$
AIII10	(this)	$13.3 \pm 1.7$
Mittelwert <sup>2</sup> (this-LSA)		$15.6 \pm 0.6$
[NI80] <sup>3</sup>	$(^{21}\text{Ne})^2$	$16.9 \pm 0.8$
[EU88] <sup>3</sup>	$(^{21}\text{Ne})^2$	$15.8 \pm 0.8$
[GR90B]	$(^{21}\text{Ne})$	$14.4 \pm 0.1$
[LY98B]	$(^{21}\text{Ne})^1$	$15.87 \pm 0.18$

<sup>3</sup> Übernommen aus [MI91]

Unsicherheit ist

<sup>1</sup> Standardabweichung von  $^{21}\text{c}$

<sup>2</sup> Standardabweichung des Mittelwertes

gegenüber den Produktionsraten höher, die für das LSA an die Daten St. Severins verwendet wurden (Tabelle 7.4).

Die Auswirkungen der Gehalte der Haupttargetelemente auf die berechneten Produktionsraten zeigt Tabelle 7.4 für St. Severin und Knyahinya für jeweils zwei Kompositionen. Für Knyahinya wurde die L-Chondrit-Chemie von [MA79] gegenüber der von Jochum [JO95] getestet. Im vorigen Kapitel wurden die Konzentrationen nach [MA79] denen von [JO95] vorgezogen, da die Gehalte für Rb und Sr nach [JO95] deutlich oberhalb der von [MA79] für L-Chondrite angegebenen höchsten Klassenwerte von Rb = 4.0 ppm und Sr = 11.9 ppm liegen.

Infolgedessen liegt die Produktionsrate  $^{83}\text{P}$  nach [JO95] gegenüber  $^{83}\text{P}$  nach [MA79] um 26 % höher, so daß die Anwendung von  $^{83}\text{P}$  nach [JO95] zur Bestimmung von T zu einem unrealistisch geringen Bestrahlungsalter Knyahinyas führen würde. Im Falle St. Severins würde die Anwendung der mittleren LL-Chondrit Chemie ein um etwa 20 % geringeres Expositionsalter gegenüber dem Ergebnis unter Benutzung der Rb-Konzentration nach [LA87] liefern, das ebenfalls im Widerspruch zu den Altern in der Literatur stehen würde.

Auch die Verhältnisse  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  und  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  ändern sich signifikant gegenüber der Unsicherheit von 3 % der Verhältnisse selbst. Dabei ist die Änderung für  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  höher als für  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$ , da sich für ersteres die größere Massenzahldifferenz stärker auf die Differenz der Elementarproduktionsraten beider Isotope auswirkt. So bewirkt im Falle St. Severins die um einen Faktor 3.7 gegenüber der mittleren LL-Chondrit Komposition verminderte Rb-Konzentration nach [LA87] eine Vergrößerung des Verhältnisses  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  um 8 %, da die Erzeugung aus Rb für  $^{83}\text{Kr}$  einen größeren Anteil an der Gesamtproduktion hat als für  $^{78}\text{Kr}$  - beispielsweise wird im Zentrum eines 50 cm-Durchmesser-L-Chondriten mit Konzentrationen nach [MA79] für  $^{83}\text{Kr}$  28 %, für  $^{78}\text{Kr}$  jedoch nur 17 % aus Rb produziert.

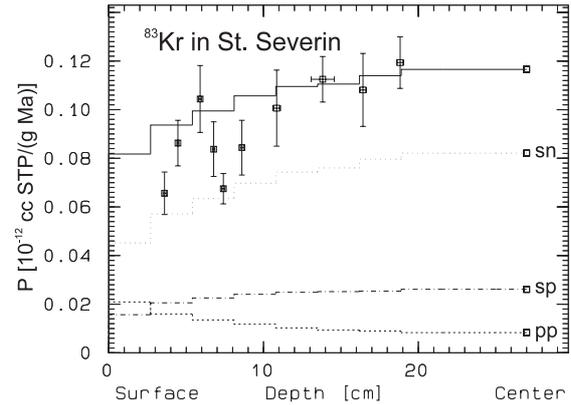


Abbildung 7.18 Experimentelles [LA87] und theoretisches (durchgezogene Linie)  $^{83}\text{Kr}$ -Tiefenprofil in St. Severin. Die Daten sind für ein Alter von 16.0 Ma und einen Radius von  $R = 27$  cm eingezeichnet. Für die theoretischen Produktionsraten sind außerdem die Anteile der sekundären Neutronen (sn) und Protonen (sp) sowie der primären Protonen (pp) angegeben.  $\phi_{\text{GCR}}$  beträgt nach Kapitel 7.1.1  $\phi_{\text{GCR}} = 4.06 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ .

Tabelle 7.4 Exemplarische Produktionsraten  $^{83}\text{P}$  und Verhältnisse  $^{78,81}\text{P}/^{83}\text{P}$  für Knyahinya und St. Severin für jeweils zwei verschiedene Zusammensetzungen der Haupttargetelemente.  $\phi_{\text{GCR}}$  wurde für  $^{83}\text{P}$  nach Kapitel 7.1.1 mit  $\phi_{\text{GCR}} = 4.06 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  berücksichtigt.

	Knyahinya R = 45 cm, Zentrum		St. Severin R = 27 cm, Zentrum	
Rb, Sr, Y, Zr [ppm]	4.4, 14.2, 1.8, 6.22 [JO95]	3.1, 11.1, 2.1, 5.9 [MA79]	0.62, 11.1, 2.0, 5.9 [LA87, MA79]	2.3, 11.1, 2.0, 5.9 [MA79]
$^{83}\text{P}$ [ $10^{-12}\text{cc}/(\text{g Ma})$ ]	0.211	0.167	0.117	0.140
$^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$	0.131	0.135	0.167	0.155
$^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$	0.522	0.528	0.568	0.550

Die unterschiedliche Chemie der einzelnen Proben St. Severins könnte somit auch beitragen zur Abweichung und Nichtlinearität der für St. Severin gemessenen Korrelation  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  gegen  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  von dem hierfür linearen Verhalten der Chondrite [LA87]. Denn der geringe Rb-Gehalt in St. Severin erhöht die Verhältnisse  $^{78}\text{P}/^{83}\text{P}$  gegenüber den Chondriten mit gewöhnlichen Rb-Konzentrationen.

### 7.4.5 Zusammenfassende Bewertung

Basierend auf neuen Messungen von Wirkungsquerschnitten zur Protonen-induzierten Produktion von Krypton-Isotopen aus Rb, Sr, Y und Zr sowie von Dicktargetproduktionsraten wurden Simulationsrechnungen durchgeführt, die die Produktionsraten von Krypton-Isotopen in Meteoroiden innerhalb von 9 % und die Verhältnisse der Produktionsraten innerhalb von 3 % wiedergeben.

Diese Güte der Modellrechnungen wurde mit den experimentellen Daten Knyahinyas und St. Severins erfolgreich getestet und hat nur Bestand, wenn die chemische Komposition, die als Eingabe in die Rechnungen gewählt wird, eine entsprechende Qualität hat. Unter dieser Voraussetzung ergeben sich für diese beiden Meteorite Bestrahlungsalter, die gut mit den Literaturwerten harmonieren. Allerdings sollten die bisher für die  $^{81}\text{Kr}$ -Kr-Datierung benutzten empirischen Korrelationen durch die demgegenüber physikalisch sinnvoll berechneten Zusammenhänge ersetzt werden.

## 7.5 Die Produktion kosmogener Nuklide in der Mondoberfläche

Extraterrestrische Materie liegt nicht nur in Form von Meteoriten vor sondern auch in Gestalt der Proben, die von den Apollo-Missionen vom Mond mitgebracht wurden. Dies sind zum einen die Mondgesteine, das sind Teile von Felsbrocken oder kleinere Steine von der Mondoberfläche. Zum anderen sind dies die sogenannten „Drill Cores“, das ist Mondmaterial, das durch Bohrungen in der Mondoberfläche gewonnen wurde. Drill Cores stellen Material mit fest definierten Tiefen bis zu mehreren Metern unterhalb der Oberfläche zur Verfügung.

Durch die bekannte Geometrie während der Bestrahlung durch die GCR bieten Proben der Drill Cores eine gute Möglichkeit, anhand der experimentellen Produktionsraten kosmogener Nuklide in ihnen theoretische Modellrechnungen zu überprüfen. Dazu wird analog dem in Kapitel 7.1.1 beschriebenen Vorgehen am Meteoriten Knyahinya aus den in Drill Cores gemessenen Produktionsraten  $\phi_{\text{GCR}}$  für den Mond bestimmt und damit die Normierung der Rechnungen für 1 A.U. festgelegt.

Im folgenden wird zunächst die Produktion kosmogener Nuklide durch die GCR im Apollo 15-Drill Core berechnet (Kapitel 7.5.1). Die daraus bestimmte Normierung in Form von  $\phi_{\text{GCR}}$  wird dann für die Analyse der GCR-Produktionsrate kosmogener Kryptons im Stein 68815 angewendet (Kapitel 7.5.2).

### 7.5.1 Langlebige Radionuklide im Apollo 15-Drill Core

Im Apollo 15-Drill Core liegen Tiefenprofile der langlebigen Radionuklide  $^{26}\text{Al}$  [NI84A],  $^{10}\text{Be}$  und  $^{36}\text{Cl}$  [NI84B] sowie  $^{53}\text{Mn}$  [IM73] zur Untersuchung mit den Modellrechnungen vor.

Modellrechnungen zur Produktion von  $^{53}\text{Mn}$  werden jedoch aus den folgenden Überlegungen nicht durchgeführt. Zur Erstellung einer validierten Anregungsfunktion für die Neutronen-induzierte Produktion aus dem Haupttargetelement Eisen liegen keine Dicktargetproduktionsraten aus terrestrischen Simulationsexperimenten vor. Modellrechnungen zur Produktion von  $^{53}\text{Mn}$  wurden daher bisher [LY96] derart durchgeführt, daß für die Anpassung der Wirkungsquerschnitte der Neutronen-induzierten Produktion direkt  $^{53}\text{Mn}$ -Tiefenprofile in Meteoriten gut bekannter Geometrien unter Verwendung des bekannten  $\phi_{\text{GCR}}$  (Kapitel 7.1.1) herangezogen wurden. Dadurch haben die Modellrechnungen jedoch ihren *a priori*-Charakter verloren und noch bestehende Unzulänglichkeiten in den Anregungsfunktionen treten nicht zu Tage.

Zur Lösung dieses Problems wurde daher begonnen, Wirkungsquerschnitte der Protonen-induzierten Produktion sowie Dicktargetproduktionsraten aus Eisen zu messen [ME98]. Gegenüber der Zuhilfenahme älterer Daten [GE79] sowie von Modellrechnungen zur Erstellung einer Anregungsfunktion für die Protonen-induzierte Reaktion wird mit diesen Ergebnissen ein neuer Verlauf angegeben werden. In Anbetracht dieser Entwicklungen ist es daher bezüglich der Durchführung der Modellrechnungen

sinnvoll, auf den Abschluß der Validierung der Anregungsfunktionen sowohl für die Protonen- als auch für die Neutronen-induzierte Produktion zu warten.

Dies betrifft insbesondere auch die Modellrechnungen zur Erzeugung von  $^{53}\text{Mn}$  durch die SCR - die Produktion durch die SCR wird im nächsten Kapitel behandelt. Da hierfür in die Rechnungen nur die Wirkungsquerschnitte der Protonen-induzierten Reaktion  $^{54}\text{Fe}(p,2pxn)^{53}\text{Mn}$  eingehen, ist mit der in ihrem Verlauf bisher nicht eindeutig ausgemessenen Anregungsfunktion eine Durchführung dieser Rechnungen nicht sinnvoll.

Daher wird im folgenden nur auf die Produktion von  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{10}\text{Be}$  und  $^{36}\text{Cl}$  im Apollo 15-Drill Core eingegangen. Abbildung 7.19 zeigt dazu die gemessenen Produktionsraten und die theoretischen Rechnungen. Diese wurden mit den jeweiligen in Abbildung 7.19 angegebenen  $\phi_{\text{GCR}}$  normiert, die durch LSA an die experimentellen Daten berechnet wurden. Im Falle des  $^{26}\text{Al}$  und  $^{36}\text{Cl}$  wurden dazu jedoch nicht die Proben der Tiefen 4.2 und  $387.8\text{ gcm}^{-2}$  herangezogen, da die Produktionsraten ersterer auch einen SCR-Anteil enthalten und die chemische Zusammensetzung letzterer deutlich von der der anderen Proben abweicht.

Das LSA ergibt kein übereinstimmendes  $\phi_{\text{GCR}}$  für alle Profile gleichzeitig, sondern die  $\phi_{\text{GCR}}$  für  $^{10}\text{Be}$  und  $^{36}\text{Cl}$  liegen gegenüber dem für  $^{26}\text{Al}$  um 12 % beziehungsweise 10 % höher. Zur Diskussion dessen ist zu bedenken, daß die  $\phi_{\text{GCR}}$  aus  $^{36}\text{Cl}$  und  $^{10}\text{Be}$  für 1 A.U. gegenüber dem im Meteoroidenorbit bestimmten  $\phi_{\text{GCR}}=4.06\text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  [LY96] für 2-3 A.U. nicht physikalisch sinnvoll sind. Denn der Flußdichtegradient sollte demgegenüber eine um 2-6 % niedrigere Flußdichte für die Position des Mondes bei 1 A.U. bewirken.

Obwohl diese Abweichung für  $^{36}\text{Cl}$  und  $^{10}\text{Be}$  gegenüber der Unsicherheit der Produktionsraten selbst von 9 % nur gering ist, lassen sich dennoch Gründe hierfür aufzeigen. Die Diskrepanz zwischen den Rechnungen für  $^{26}\text{Al}$  und  $^{10}\text{Be}$  zeigt sich ebenfalls bei anderen Untersuchungen. Auch bei der Modellierung von  $^{10}\text{Be}$  und  $^{26}\text{Al}$  in Knyahinya [LY96] und Mbale [ME98] sowie bei der Betrachtung einer großen Anzahl von Meteoriten einzelner Meteoritenklassen (H- und LL-Chondrite) [ME98] tritt immer wieder das Problem auf, daß die Daten für  $^{26}\text{Al}$  durch die Rechnungen gut beschrieben werden, diese jedoch die Werte für  $^{10}\text{Be}$  unterschätzen.

Die Ursache für diese Schwierigkeiten ist nicht eindeutig geklärt und die Diskrepanzen sind insofern unverstänlich, als daß die Anregungsfunktionen für alle Targetelemente durch die Dicktargetexperimente validiert sind [LY96]. Trotzdem deuten Ergebnisse für Meteoritenklassen mit unterschiedlichen Sauerstoffgehalten auf fehlerhafte Wirkungsquerschnitte für die Neutronen-induzierte Produktion aus

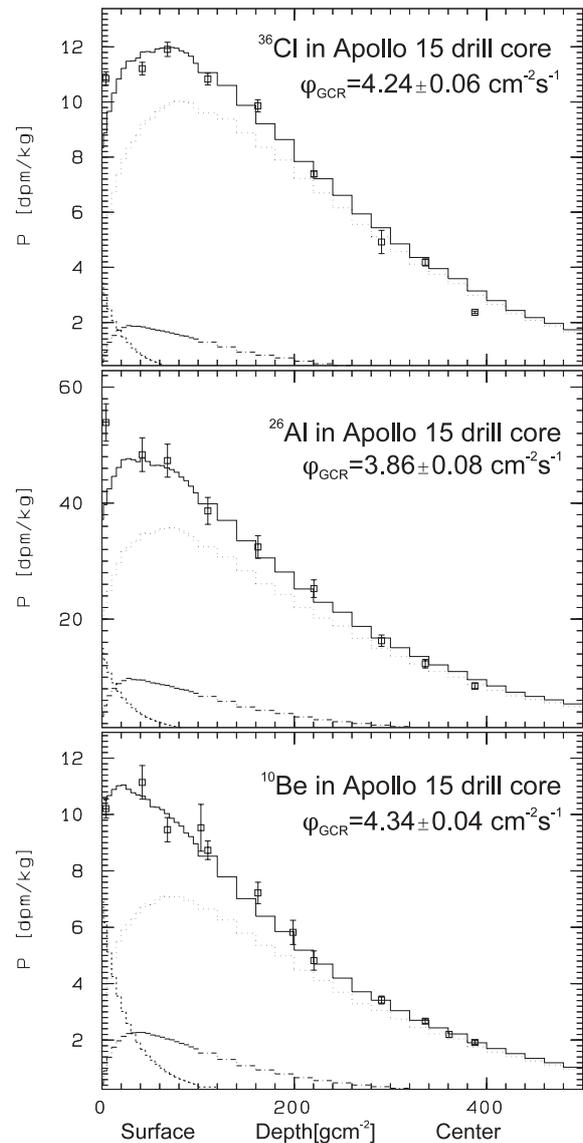


Abbildung 7.19  $^{36}\text{Cl}$ -,  $^{26}\text{Al}$ - und  $^{10}\text{Be}$ -Produktionsraten im Apollo 15-Drill Core. Experimentelle Daten stammen für  $^{26}\text{Al}$  aus [NI84A] sowie für  $^{10}\text{Be}$  und  $^{36}\text{Cl}$  aus [NI84B]. Die theoretischen Produktionsraten (durchgezogen) sind außerdem unterteilt in die Erzeugung durch die primären (gestrichelt) und die sekundären Protonen (gestrichpunktet) sowie durch die sekundären Neutronen (gepunktet). Die spektralen Flußdichten für diese Teilchen sind die aus [DA91]. Die chemische Zusammensetzung des Cores wurde aus [MI91] übernommen.

Sauerstoff hin [ME98] - das Haupttargetelement zur Produktion von  $^{10}\text{Be}$ . Zur Klärung dessen wird auch die Bestimmung der Anregungsfunktion mit Hilfe der Experimente dieser Arbeit beitragen.

Im Falle des  $^{36}\text{Cl}$  hat die Produktion durch die Reaktion  $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$  den entscheidenden Einfluß auf die Bestimmung von  $\varphi_{\text{GCR}}$ . Der in Abbildung 7.19 angegebene Wert wurde mit einem Cl-Gehalt von 20 ppm [RE72B] berechnet, der nicht direkt im Core, sondern in einer Apollo 15-Oberflächenprobe gemessen wurde. Außerdem wurde die mit der spektralen Flußdichte nach Dagge [DA91] berechnete Produktion der Reaktion  $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$  um 13.5 % erhöht, wodurch der Unterschied in der von Dagge [DA91] benutzten Apollo 11-Chemie gegenüber der Apollo 15-Komposition berücksichtigt wird [WA73A, DA91].

Demgegenüber ergibt die Vernachlässigung der Produktion durch die angegebene  $(n,\gamma)$ -Reaktion ein  $\varphi_{\text{GCR}} = 5.28 \pm 0.28 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ . Die Diskrepanz des mit 20 ppm Chlor berechneten  $\varphi_{\text{GCR}}$  zu dem mit  $^{26}\text{Al}$  bestimmten Wert könnte somit durch einen Chlorgehalt von 30 ppm behoben werden, womit dann  $\varphi_{\text{GCR}} = 3.84 \pm 0.04 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$  resultieren würde. Die nichtbekannte Chlorkonzentration im Core bewirkt also eine nicht unerhebliche Unsicherheit des mit den  $^{36}\text{Cl}$ -Produktionsraten bestimmten  $\varphi_{\text{GCR}}$ .

Nimmt man daher den  $\varphi_{\text{GCR}}$ -Wert wie er aus dem  $^{26}\text{Al}$ -Profil berechnet wurde als guten Schätzwert für das wahre  $\varphi_{\text{GCR}}$ , so liegt dieser gegenüber dem  $\varphi_{\text{GCR}}$  für die Meteoroiden ( $\varphi_{\text{GCR}} = 4.06 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ ) um 5 % niedriger. Die Meteoroiden bewegen sich im Mittel auf Bahnen im Abstand kleiner als drei A.U. von der Sonne, so daß die Flußdichteabnahme von 5 % zur Mondposition gut mit dem von den Pioneer 10/11-Missionen gemessenen Gradienten von 2 - 3 % / A.U. [MK87] übereinstimmt.

## 7.5.2 Krypton-Isotope in 68815

Für die Produktion kosmogener Krypton-Isotope liegen in einer ganzen Reihe von lunaren Steinen Messungen vor [MA71, DR74, HO78, RE91]. Für die theoretische Modellierung dieser Daten müssen jedoch zwei Gesichtspunkte bedacht werden. Folgend aus den obigen Ergebnissen zur Modellierung kosmogener Kryptons in Meteoriten (Kapitel 7.4.5) ist zum einen eine Berechnung nur dann sinnvoll, wenn auch die Gehalte der Haupttargetelemente Rb, Sr, Y und Zr bekannt sind. Zum anderen wurden die Messungen in den Steinen zum Teil an Stücken vorgenommen, deren Entnahmepunkte im Stein nahe an dessen Oberfläche lagen. Dann muß berücksichtigt werden, daß die Produktion der kosmogener Nuklide nicht nur durch die GCR sondern auch durch die SCR erfolgt.

Im folgenden soll die Produktion kosmogener Kryptons im Stein 68815 behandelt werden, das eine Schlüsselstellung dabei einnimmt, die langzeitgemittelten SCR-Parameter ( $R_0, J_0$ ) zu bestimmen<sup>1</sup>. Im Zuge der Untersuchungen dazu wurde auch für  $^{81}\text{Kr}$  ein Tiefenprofil mit vier Meßpunkten ( $d < 6 \text{ g cm}^{-2}$ ) [RE91] aufgenommen, außerdem liegt von einer tiefergelegenen Probe ( $d = 18 \text{ g cm}^{-2}$ ) ein Datenpunkt vor [HO78]. Für letzteren gibt Tabelle 7.5 die gemessenen Daten und die Modellrechnungen an.

Tabelle 7.5 Experimentelle Ergebnisse [HO78] und Modellrechnungen für kosmogener  $^{81,83}\text{Kr}$  in der Probe 68815,113. Die SCR-Rechnungen wurden für die Dichte  $\rho = 2.8 \text{ g cm}^{-3}$ , die Erosionsrate  $E = 1 \text{ mm/Ma}$ ,  $T = 2 \text{ Ma}$ , die Targetchemie (in [ppm]: Rb = 8.8, Sr = 160, Y = 64.4, Zr = 331 [HO78]) sowie die Halbebenengeometrie (siehe Kapitel 7.6.1) und für zwei in der Literatur angegebene Parametersätze [RA94, MI96A] vorgenommen. Die  $P_{\text{GCR}}$  wurden mit den spektralen Flußdichten nach [DA91] und  $\varphi_{\text{GCR}} = 3.86 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$  berechnet (Kapitel 7.5.1).

	[HO78]	$P_{\text{GCR}}$	$P_{\text{GCR+SCR}}$ ( $(R_0, J_0) = (85, 66)$ [RA94])	$P_{\text{GCR+SCR}}$ ( $(R_0, J_0) = (125, 55)$ [MI96A])
$^{83}\text{P}$ [ $10^{-12} \text{ cc}/(\text{g Ma})$ ]	$1.17 \pm 0.18$	1.14	1.16	1.24
$^{81}\text{P}$ [ $10^{-12} \text{ cc}/(\text{g Ma})$ ]	$0.769 \pm 0.116$	0.686	0.697	0.740

<sup>1</sup> Die Problemstellung zur Bestimmung der SCR-Parameter sowie eine Beschreibung des Steins 68815 findet sich in Kapitel 7.6. Abkürzend werden die SCR-Parameter im folgenden als  $(R_0, J_0) = (125, 55)$  für  $(R_0 = 125 \text{ MV}, J_0 = 55 \text{ cm}^2\text{s}^{-1})$  geschrieben.

Die Rechnungen berücksichtigen zum einen die Produktion  $P_{\text{GCR}}$  nur durch die GCR und zum anderen die Produktion  $P_{\text{GCR+SCR}}$  als Summe aus GCR- und SCR-Erzeugung. Für letzteren Beitrag wurden für die Rechnung exemplarisch zwei in der Literatur [RA94, MI96A] angegebene Parametersätze für  $(R_0, J_0)$  benutzt, die recht gegensätzlich ein weiches [RA94] und ein hartes SCR-Spektrum [MI96A] (Abbildung 1.3) parametrisieren. Dementsprechend beträgt der SCR-Beitrag zur Produktion mit dem Satz von Rao et al. [RA94] nur etwa 2 %, unter Anwendung der Parameter nach Michel et al. [MI96A] beläuft er sich gemäß der anderen spektralen Flußdichte auf immerhin etwa 10 %.

Die experimentellen Ergebnisse von Hohenberg et al. [HO78] werden mit den  $P_{\text{GCR+SCR}}$  für beide Sätze  $(R_0, J_0)$  gut wiedergegeben, infolge der hohen Unsicherheiten der Meßwerte läßt sich jedoch keine Aussage zugunsten eines Parametersatzes machen. Da jedoch der GCR-Anteil an der Produktion mindestens 90 % beträgt, zeigt dieses Resultat, daß  $P_{\text{GCR}}$  in 68815 für diesen Datenpunkt richtig berechnet wird.

Wie stellen sich die Verhältnisse nun für das von Reedy und Marti [RE91] gemessene Tiefenprofil dar? Abbildung 7.20 zeigt den Vergleich der gemessenen und berechneten Werte. Der Anstieg der Produktionsraten zur Oberfläche zeigt, daß für derartig geringe Tiefen der SCR-Anteil an der Produktion nicht zu vernachlässigen ist. So berechnet man für die Tiefe  $d = 5 \text{ g cm}^{-2}$  für  $(R_0, J_0) = (125,55)$  einen SCR-Anteil von  ${}^{81}\text{C}_{\text{SCR}} = 0.72 \cdot 10^{-13} \text{ cc/g}$  und für  $(R_0, J_0) = (85,66)$  noch einen von  ${}^{81}\text{C}_{\text{SCR}} = 0.23 \cdot 10^{-13} \text{ cc/g}$ . Daher sollten die  ${}^{81}\text{C}_{\text{GCR}}$  physikalisch sinnvoll unterhalb aller gemessenen Gehalte  ${}^{81}\text{C}$  von  ${}^{81}\text{Kr}$  liegen. Tatsächlich jedoch trifft dies nur für die zwei oberflächennahen Punkte zu, so daß für dieses Tiefenprofil die gemessene und die berechnete GCR-Komponente nicht übereinstimmen.

Abbildung 7.20 zeigt auch das  $C_{\text{GCR}}$  wie es sich nach der Arbeit von Hohenberg et al. [HO78] berechnet. Es liegt an der Oberfläche 16 % unterhalb des Wertes dieser Arbeit, was angesichts der für die beiden Arbeiten unterschiedlichen zur Verfügung stehenden Wirkungsquerschnitte zur Berechnung eine gute Übereinstimmung ist.

Das  $C_{\text{GCR}}$  von Reedy und Marti [RE91] liegt einen Faktor 1.5 unterhalb dem dieser Arbeit. Allerdings wurde  $C_{\text{GCR}}$  von Reedy und Marti [RE91] für die Bestimmung von  $(R_0, J_0)$  selbst als anzupassender Parameter gewählt und ihr  $C_{\text{GCR}}$  liegt nach ihrer Aussage am unteren Ende des zu erwartenden  $C_{\text{GCR}}$ . Nach den Rechnungen dieser Arbeit ist ein derart niedriges  $C_{\text{GCR}}$  nicht realistisch. Es wurde kein Grund für die Diskrepanz zwischen dem von [RE91] gemessenen und dem in dieser Arbeit berechneten  $C_{\text{GCR}}$  gefunden. Dies ist erstaunlich, da im Gegensatz dazu die GCR-Komponente der Probe 68815,113 (Tabelle 7.5) gut beschrieben wurde. Diese zunächst nicht verständliche Tatsache klärt sich durch den Vergleich der Messungen von Reedy und Marti [RE91] und von Hohenberg et al. [HO78] auf.

Die von [RE91] für die Proben des Tiefenprofils angegebene chemische Komposition der Haupttargetelemente (in [ppm]: Rb = 8.8, Sr = 180, Y = 64.4, Zr = 220) ist ähnlich der von 68815,113 (Tabelle 7.5). Für  $d = 18 \text{ g/cm}^2$ , der Tiefe der Probe 68815,113, wird für die Komposition von [RE91] eine um 10 % niedrigere  $P_{\text{GCR}}$  gegenüber der  $P_{\text{GCR}}$  mit der Zusammensetzung von [HO78] berechnet. Korrigiert man die von [HO78] gemessene Produktionsrate somit auf die Chemie von [RE91], erhält man für  $d = 18 \text{ g/cm}^2$

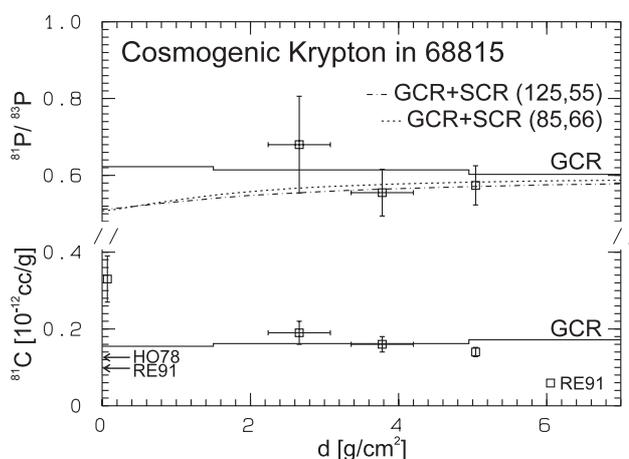


Abbildung 7.20 Kosmogener Krypton in 68815. Eingezeichnet sind die GCR-Rechnungen ( $\phi_{\text{GCR}} = 3.86 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , ohne Erosion, durchgezogene Linien) sowie die GCR-Produktionsraten (Pfeile) an der Oberfläche wie sie sich nach [HO78] berechnen und wie sie von Reedy und Marti [RE91] gewählt wurden. Für die Verhältnisse  ${}^{81}\text{P}/{}^{83}\text{P}$  sind außerdem die Rechnungen mit Berücksichtigung von GCR und SCR eingezeichnet, wobei in den Klammern jeweils  $(R_0, J_0)$  angegeben ist und die Erosion mit  $E = 1 \text{ mm/Ma}$  sowie  $T = 2 \text{ Ma}$  berücksichtigt wurde.

ein  $^{81}\text{P} \approx 0.69 \cdot 10^{-12} \text{ cc}/(\text{g Ma})$ . Dieser Wert ist nicht verträglich mit dem Meßwert von [RE91] für  $d = 5 \text{ g}/\text{cm}^2$  mit  $^{81}\text{P} = 0.462 \cdot 10^{-12} \text{ cc}/(\text{g Ma})$ , da die berechnete Zunahme der Produktionsraten von  $5 \text{ g}/\text{cm}^2$  nach  $18 \text{ g}/\text{cm}^2$  nur 12 % beträgt. Diese Inkompatibilität der Messungen von [RE91] und [HO78] wurde von [RE91] mit der Inhomogenität der Targetelemente begründet, was nach diesen Überlegungen jedoch nicht haltbar ist.

Neben den Gehalten  $^{81}\text{C}$  wurden auch die Verhältnisse  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  gemessen, die im oberen Teil von Abbildung 7.20 gezeigt sind. Sie werden durch die Modellrechnungen gut beschrieben, gegenüber den reinen GCR-Verhältnissen sogar von den SCR + GCR-Verhältnissen noch etwas besser. Diese werden durch die Berücksichtigung der SCR gegenüber den GCR-Rechnungen abgesenkt, da relativ mehr  $^{83}\text{Kr}$  als  $^{81}\text{Kr}$  durch die SCR produziert wird. Allerdings unterscheiden sich die Verhältnisse für beide Sätze ( $R_0, J_0$ ) kaum, da unabhängig von ( $R_0, J_0$ ) die relativen Anteile  $P_{\text{SCR}}$  an  $P_{\text{SCR}+\text{GCR}}$  für beide Nuklide ungefähr gleich sind.

Obwohl die Gehalte der Haupttargetelemente für die Proben von [RE91] gemessen wurden, könnte eine veränderte Chemie diese gegenüber den gemessenen  $^{81}\text{C}$  qualitativ andere Beschreibung der experimentellen Verhältnisse  $^{81}\text{P}/^{83}\text{P}$  durch die Rechnungen erklären. Eine Absenkung der Sr- und Zr-Gehalte um einen Faktor 0.55 auf 100 ppm beziehungsweise 120 ppm würde die GCR-Verhältnisse nahezu unverändert lassen, an der Oberfläche jedoch ein  $^{81}\text{C}_{\text{GCR}}$  von etwa  $0.1 \cdot 10^{-12} \text{ cc}/\text{g}$  liefern. Zum einen ist eine solche Variation der Elementgehalte durchaus normal, andererseits liegt sie jedoch für Sr außerhalb des von [RE91] angegebenen Unsicherheitsbereiches von nur 20 ppm.

Einen weiteren Beitrag zur Klärung dieses Problems könnte die Berechnung der GCR-Produktionsraten mit einer Halbkugelgeometrie mit einem Radius von  $23 \text{ g}/\text{cm}^2$  [KO78, RA94] an Stelle der hier angewendeten Halbebenen-Geometrie liefern. Denn Reedy und Masarik [RE95] zeigten mit solchen Simulationsrechnungen, daß für Radien der Halbkugeln kleiner als  $35 \text{ g}/\text{cm}^2$  die Produktionsraten an der Oberfläche kleiner sind als in gleichen Tiefen in der Halbebene.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß eine Extraktion des Satzes ( $R_0, J_0$ ) aus dem Tiefenprofil von [RE91] nicht sinnvoll ist, solange die Berechnung der GCR-Komponente in Einklang mit den experimentellen Daten nicht gegeben ist und die angeführten Diskrepanzen nicht verstanden sind. Die von Reedy und Marti [RE91] gewählte Methode, die GCR-Komponente neben ( $R_0, J_0$ ) ebenfalls als anzupassenden Parameter zu wählen, wird hier nicht unterstützt, da mit dem physikalischen Modell dieser Arbeit  $P_{\text{GCR}}$  validiert mit einer Unsicherheit von 9 % berechnet wird. Zur Klärung des Problems sollten weitere Messungen kosmogener Kryptonens insbesondere von Proben in Tiefen mit reiner GCR-Produktion zusammen mit den Gehalten von Rb, Sr, Y und Zr erfolgen.

## 7.6 Das über die letzten 2 Ma langzeitgemittelte SCR-Spektrum

In Kapitel 7.1.1 wurde beschrieben wie aus den in Meteoriten gemessenen, durch die GCR induzierten Produktionsraten kosmogener Nuklide der langzeitgemittelte Modulationsparameter der GCR festgelegt wurde. Auch im Falle der SCR ist die Information über ihre langzeitgemittelte spektrale Flußdichte in den Produktionsraten kosmogener Nuklide enthalten. Allerdings ist der Parametersatz ( $R_0, J_0$ ) der SCR sehr viel schwerer aus den gemessenen Daten zu extrahieren als im Falle der GCR.

Die Produktionsraten eines kosmogener Nuklids ergeben sich prinzipiell als Summe aus einem GCR- und einem SCR-Anteil. Erste Voraussetzung zur Bestimmung des SCR-Beitrages ist somit die akkurate Kenntnis der GCR-Produktionsrate in einem Objekt. Wie diese und die Arbeit Leyas [LY96] zeigen, werden die GCR-Produktionsraten innerhalb einer Unsicherheit von 9 % berechnet und sind somit genau genug, um sinnvolle Aussagen über den SCR-Anteil zu machen.

Infolge der niedrigen Energien der SCR unterhalb von etwa 200 MeV werden durch sie kaum Sekundärteilchen produziert, so daß die Produktion von Restkernen in guter Näherung auf die durch die primären SCR-Protonen beschränkt ist [MA96]. Die zweite Bedingung für eine sinnvolle Interpretation durch Modellrechnungen ist somit das Vorliegen genauer und vollständiger Anregungsfunktionen für die Protonen-induzierte Produktion - die aber liegen durch die GCR-Modellrechnungen bereits vor.

Die geringe Energie der SCR-Teilchen bewirkt außerdem, daß die Protonen im Material stark abgebremst werden. Beide Effekte zusammen haben zur Folge, daß die durch die SCR produzierten Restkerne nur in sehr kleinen Körpern oder in direkt der kosmischen Strahlung ausgesetzten, oberflächennahen Material zu finden sind.

Bei Meteoroiden geht das oberflächennahe Material zumeist durch Ablation beim Fall auf die Erde verloren, so daß sie für *genaue* Untersuchungen von SCR-Effekten im allgemeinen nicht brauchbar sind. Dagegen sind von den Apollo Missionen mitgebrachte Mondgesteine ideal zum Studium SCR-induzierter Produktion kosmogener Nuklide. Denn diese liefern Proben an der Oberfläche eines Körpers, die weitestgehend ungestört der kosmischen Strahlung ausgesetzt waren. Daher wurden in Oberflächenmaterial einer ganzen Reihe von Mondgesteinen Tiefenprofile von langlebigen Radionukliden ( $^{26}\text{Al}$ ,  $^{53}\text{Mn}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ) und Edelgasen (He, Ne, Ar) aufgenommen.

Die Interpretation dieser Tiefenprofile wird jedoch durch den Effekt der „Space Erosion“ kompliziert. Darunter versteht man den Abtrag von Material einer extraterrestrischen Gesteinsoberfläche durch Mikrometeorite, deren Radien im Bereich von  $\mu\text{m}$  bis mm liegen, sowie durch Sputtereffekte der kosmischen Strahlung. Durch ihre Einwirkung werden die Oberflächen mit typischen Erosionsraten  $E$  von  $E \approx 1 \text{ mm/Ma}$  abgetragen. Da die durch die SCR-induzierten Produktionsraten innerhalb weniger Millimeter Tiefe im Körper stark abnehmen, muß die Space Erosion bei der Interpretation berücksichtigt werden. Denn eine Oberflächenprobe lag zu Beginn der Bestrahlung des Gesteins vor typischerweise mehreren Ma einige Millimeter unterhalb der Oberfläche.

Durch diesen Effekt müssen zwei weitere Parameter bei der Beschreibung der Produktionsraten miteinbezogen werden: die Erosionsrate  $E$  und das Bestrahlungsalter  $T$ . Um die zusätzliche Unsicherheit dadurch gering zu halten, werden bevorzugt Körper herangezogen, deren Erosionsraten und Bestrahlungsalter gut bestimmt sind. Der Stein 68815 der Apollo 16-Mission ist ein solch gut untersuchter Körper, so daß in 68815 bisher die größte Vielfalt an Tiefenprofilen SCR-produzierter Nuklide gemessen wurde ( $^{14}\text{C}$  [JU92];  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{53}\text{Mn}$  [KO78];  $^{10}\text{Be}$  [NI88]; He, Ne, Ar [RA94]; Kr [RE91]).

Die Brekzie 68815 wurde von der Spitze eines großen Felsblocks des South Ray-Kraters abgeschlagen. Das Bestrahlungsalter von 68815 wurde mit der  $^{81}\text{Kr}$ -Kr-Datierung zu  $T = 2.04 \pm 0.09 \text{ Ma}$  [DR74] bestimmt und ist identisch mit dem Bildungsalter des South Ray-Kraters. Auch die Erosionsrate wurde gemessen; für sie liegen differierende Werte zwischen  $E = 1 \text{ mm/Ma}$  [WA73B] und  $E = 2.5 - 3 \text{ mm/Ma}$  [BL75] vor. Für letzteren Wert wurde von Blanford et al. [BL75] jedoch die Möglichkeit eines Artefakts oder eines lokalen Effekts eingeräumt.

Neben 68815 bietet auch der Stein 64455 gute Voraussetzungen zur Untersuchung von Tiefenprofilen mit SCR-Produktion. Die Brekzie 64455 mit dem Bestrahlungsalter von  $T = 2 \text{ Ma}$  [AR93] steht ebenfalls in Zusammenhang mit der Bildung des South Ray-Kraters. 64455 ist ein kleines Objekt ( $5.6 \cdot 4.0 \cdot 2.5 \text{ cm}$ ) und ist vollständig mit einer etwa 2 mm dicken Glasschicht ummantelt. Der Vergleich der Dicken des Glasmantels der auf dem Mond gelegenen Unterseite des Steins mit der Oberseite zeigt, daß die Erosionsrate für diesen Stein sehr viel kleiner als  $0.5 \text{ mm/Ma}$  war und daß 64455 wahrscheinlich sogar überhaupt keine Erosion aufweist [NI95A]. In 64455 wurden Tiefenprofile von  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{10}\text{Be}$  und  $^{36}\text{Cl}$  gemessen [AR93, NI95A].

Der dritte untersuchte Stein ist 61016, ein Stein, der als Teil des Auswurfes des South Ray-Kraters ebenfalls ein Bestrahlungsalter von 2 Ma hat [GA96A]. In Oberflächenproben von 61016 wurden Tiefenprofile der Edelgase Ne und Ar gemessen [GA96A, GA96B, RA93], die eine gute Ergänzung zu den Edelgasprofilen in 68815 sind.

Mit den Tiefenprofilen dieser Steine steht ein umfangreicher Datensatz zur Bestimmung der über die letzten 2 Ma gemittelten SCR-Parameter ( $R_0$ ,  $J_0$ ) zur Verfügung, für den in dieser Arbeit SCR+GCR-Modellrechnungen durchgeführt wurden. Derartige Modellrechnungen wurden im Rahmen der Arbeiten unserer Gruppe bereits von Bodemann [BO93] für  $^{26}\text{Al}$  und  $^{53}\text{Mn}$  an Tiefenprofilen von sechs verschiedenen Steinen vorgenommen, unter denen auch 68815 war. Bodemann erhielt daraus einen besten Satz ( $R_0$ ,  $J_0$ ) = (125, 55). Demgegenüber ergab die Arbeit von Rao et al. [RA94] anhand der Tiefenprofile des Steins 68815 beste Parameter ( $R_0$ ,  $J_0$ ) = (80-90, 58-73). Beide Ergebnisse stehen wegen ihrer unterschiedlichen Spektrenform im Widerspruch.

Dieser Gegensatz war - neben der Tatsache, daß die vorliegende Wirkungsquerschnittsbasis gegenüber der Bodemanns [BO93] erweitert und aktualisiert ist - der Anlaß, mit den aktuellen Anregungsfunktionen die angesprochenen Tiefenprofile zu modellieren.

### 7.6.1 Durchführung der SCR-Rechnungen

Für die Durchführung der SCR-Modellrechnungen wurde auf die bekannte Berechnungsmethode nach Bodemann [BO93] zurückgegriffen, die in [BO93] vollständig dokumentiert ist. Daher wird hier nur auf die wesentlichen, zum Verständnis nötigen Punkte eingegangen.

Die Berechnung der SCR-Produktionsraten berücksichtigt nur die Produktion durch die primären SCR-Protonen, deren spektrale Flußdichte  $\varphi_E(R)$  nach Gleichung (1.3) parametrisiert wird. Im Körper werden die  $\varphi_E(R)$  mit der Bremsung der Protonen nach dem Ansatz von Anderson und Ziegler mittels Gleichung (3.16) berechnet und entsprechend der Körpergeometrie für die jeweiligen Tiefen summiert. Die Rechnungen wurden für sechs Rigidities  $R_0 = (50, 75, 85, 100, 125, 150)$  MV durchgeführt.

Durch Faltung der  $\varphi_E(R)$  mit den Anregungsfunktionen der Protonen-induzierten Reaktionen wurden die SCR-Produktionsraten für  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{22}\text{Ne}$ ,  $^{21}\text{Ne}$  berechnet. Die Wirkungsquerschnitte für  $^{26}\text{Al}$  wurden der Arbeit Leyas [LY96] entnommen. Die für die Edelgase stammen aus der Arbeit von Leya et al. [LY98B] und beinhalten Ergebnisse neuer Wirkungsquerschnittsmessungen für die Haupttargetelemente Mg, Al und Si [LY98A]. Diese Messungen wurden primär durchgeführt, um die Genauigkeit der Anregungsfunktionen in Hinblick auf deren Anwendung in SCR-Rechnungen sicherzustellen (Kapitel 5.1.4).

Die Nuklide  $^{38}\text{Ar}$  und  $^{53}\text{Mn}$  wurden nicht berücksichtigt, da für sie die Wirkungsquerschnittsbasis noch nicht ausreichend genau bekannt ist. Für  $^{53}\text{Mn}$  wurde die Sachlage bereits in Kapitel 7.5.1 erläutert, für  $^{38}\text{Ar}$  steht noch keine validierte Anregungsfunktion für das Haupttargetelement Ca zur Verfügung. Die Messungen für  $^3\text{He}$  [RA94] zeigen eine starke Streuung und beinhalten nur ungenaue Informationen über den SCR-Anteil an der Produktion.

Die Gesamtproduktionsrate ergibt sich als Summe der GCR- und SCR-Produktionsrate. Die GCR-Rechnungen wurden wie in Kapitel 7.5.1 beschrieben durchgeführt und die Normierung entsprechend mit  $\varphi_{\text{GCR}} = 3.86 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  vorgenommen. Die benutzte GCR-Geometrie ist somit die einer Halbebene.

Diese Geometrie stellt jedoch nur einen Grenzfall dar und ist nicht zwangsläufig die beste Geometrie, wenn man beispielsweise im Falle des Steins 68815 bedenkt, daß dieser von der Spitze eines meterhohen Gesteinsblockes abgeschlagen wurde. Andere Geometrien der Mondgesteine im Rahmen der GCR-Rechnungen zu berücksichtigen, war in dieser Arbeit jedoch nicht möglich, da die dafür nötigen Programmsysteme nicht zur Verfügung standen.

Zu diesem Problem haben jedoch Reedy und Masarik [RE95] GCR-Modellrechnungen für Halbkugeln verschiedener Radien auf einer Halbebene durchgeführt. Die GCR-Produktionsraten der Halbkugeln zeigen eine vom Radius abhängige Verschiebung der Produktionsraten an der Oberfläche gegenüber denen der Halbebene. Da dieser Effekt in die GCR-Rechnungen dieser Arbeit nicht eingeht, ist er bei der folgenden Interpretation der SCR-Effekte in den Mondgesteinen zumindest qualitativ zu diskutieren.

Die Geometrie für die Berechnung der SCR-Produktionsraten in den Mondgesteinen wurde von Bodemann [BO93] ebenfalls mit einer Halbebene genähert. In Erweiterung dessen wurden in dieser Arbeit auch Rechnungen durchgeführt, in denen die Gesteine als Halbkugeln in einem  $2\pi$ -Raumwinkel bestrahlt wurden. Abbildung 7.21 zeigt dazu exem-

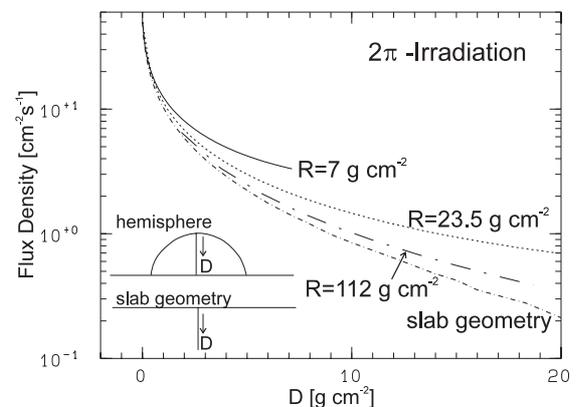


Abbildung 7.21 Flußdichten für  $2\pi$ -Bestrahlungen von Halbkugeln verschiedener Radien  $R$  und für eine Halbebene in Abhängigkeit der Tiefe  $D$  im Körper. Eingezeichnet sind die Daten für  $(R_0, J_0) = (100, 100)$  und der Chemie von 68815 nach [WA74B].

plarisch für Halbkugeln verschiedener Radien und für die Halbebene die Flußdichten für die  $2\pi$ -Bestrahlung in Abhängigkeit von der Tiefe. Je kleiner die Halbkugel ist, um so mehr ergeben sich Abweichungen zur Halbebenengeometrie, da die Teilchen in der Halbkugel bis zum Erreichen einer bestimmten Tiefe weniger abgebremst werden und so die Flußdichte erhöhen. Dies wirkt sich direkt auf die SCR-Produktion aus, die in einer Halbkugel gegenüber der in der Halbebene erhöht ist.

Die Space Erosion wurde bei den Rechnungen nur für die SCR-Komponente berücksichtigt. Im Falle der Halbkugelgeometrie wurde die Änderung des Radius mit der Zeit vernachlässigt, da zum einen für die zur Interpretation benutzten Parameter die Änderungen in den Produktionsraten maximal 2 % für gleiche Tiefen betragen. Zum anderen ist die örtliche Abhängigkeit von E nicht bekannt. Der Effekt der Space Erosion auf die Änderung der GCR-Produktionsraten wird infolge der flachen Tiefenprofile an der Oberfläche auf kleiner als 1 % abgeschätzt und daher vernachlässigt. Eine Unsicherheit bei der Berücksichtigung der Space Erosion für die GCR-Produktionsraten wäre zudem dadurch zustande gekommen, daß die GCR-Produktionsraten nur als Stufenfunktion vorliegen (Abbildung 7.19) und hätten geglättet werden müssen.

Es wurden Rechnungen mit verschiedenen Erosionsraten E durchgeführt, die den Bereich der für die Gesteine gemessenen Werte abdecken. Für jeweils einen Parametersatz (E,  $R_0$ , T) wurden die theoretischen Tiefenprofile mit Least-Squares-Adjustment (LSA) an die experimentellen Daten angepaßt, womit die über die Halbwertszeit des betrachteten Nuklids gemittelte Flußdichte  $J_0$  berechnet wurde. Der beste, mit den experimentellen Daten in Einklang stehende Satz ( $R_0$ ,  $J_0$ ) wird durch das Minimum in der Verteilung der reduzierten Chiquadrate bestimmt.

## 7.6.2 Der Stein 68815

Für den Stein 68815 wurden Rechnungen für die Nuklide  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{22}\text{Ne}$  und  $^{21}\text{Ne}$  durchgeführt; die Produktion der Krypton-Isotope wurde bereits in Kapitel 7.5.2 behandelt. Die chemische Komposition wurde für die Modellierung der Radionuklide der Arbeit von Wänke et al. [WA74B] (in %: O = 44.8, Na = 0.144, Mg = 3.85, Al = 14.2, Si = 21.8, Ca = 10.8, Ti = 0.310, Cr = 0.065, Mn = 0.047, Fe = 3.87, Co = 0.0030, Ni = 0.050) und für die Edelgase der Arbeit von Rao et al. [RA94] (in %: Mg = 3.74, Al = 15.0, Si = 20.8, Ca = 11.1, Fe = 3.69) entnommen, wobei die tiefenabhängigen  $\varphi_E$  mit der chemischen Zusammensetzung von Wänke et al. [WA74B] berechnet wurden. Die Dichte des Steins beträgt  $2.8 \text{ g cm}^{-3}$  [KO78, RA94] und für die Halbkugelgeometrie wurde ein Radius von  $23 \text{ g cm}^{-2}$  [RA94] benutzt.

Die Ergebnisse der Rechnungen für das Nuklid  $^{26}\text{Al}$  zeigt Abbildung 7.22 für die Halbebenen- (links) und die Halbkugelgeometrie (rechts). Gegenüber der Halbebenengeometrie hat die Verwendung der Halbkugelgeometrie für die Ergebnisse des LSA zweierlei zur Folge. Durch die höhere Flußdichte der SCR-Protonen in der Halbkugel gegenüber der Halbebene für gleiche Tiefen und der damit verbundenen größeren Produktionsraten ergeben sich für die Halbkugel geringere  $J_0$ -Werte. Zum anderen bewirken diese größeren Produktionsraten einen besseren Fit für die geringeren Rigidities, was sich aus der Verschiebung des Minimums der  $\chi^2$ -Werte von  $R_0 = 125 \text{ MV}$  nach  $R_0 = 100 \text{ MV}$  ablesen läßt. Dies ist anschaulich verständlich, da die Erhöhung der Produktionsraten infolge der größeren Flußdichte durch die geringeren Produktionsraten der niedrigen Rigidities ausgeglichen wird.

Der beste Fit der Modellrechnungen liegt für die als am wahrscheinlichsten angenommene Erosionsrate von  $E = 1 \text{ mm/Ma}$  bei den Rigidities  $R_0 = 100 \text{ MV}$  bis  $150 \text{ MV}$ , setzt man das reduzierte  $\chi^2$  von  $\chi^2 = 1$  als obere Grenze für einen guten Fit. Insbesondere die zwei tiefsten Datenpunkte machen den schlechteren Fit für die niedrige Rigidity  $R_0 = 85 \text{ MV}$  deutlich, da sie hierfür außerhalb der Unsicherheiten durch den niedrigen SCR-Anteil unterschätzt werden. Dies zeigt sich jedoch im Falle der Halbkugelgeometrie nicht mehr so deutlich, für die das  $\chi^2$  für  $R_0 = 85 \text{ MV}$   $\chi^2 = 1.4$  beträgt gegenüber  $\chi^2 = 2.1$  für die Ebene. Die Berechnung der  $P_{\text{GCR}}$  nach Reedy und Masarik [RE95] würde für die Halbkugel mit  $R = 23 \text{ g cm}^{-2}$  an der Oberfläche eine geringere  $P_{\text{GCR}}$  ergeben und so höhere  $P_{\text{SCR}}$  stützen.

Für die höheren Erosionsraten  $E = 2\text{-}3 \text{ mm/Ma}$  verschiebt sich der Bereich des besten Fits zu  $R_0 = 85 \text{ MV}$  bis  $R_0 = 125 \text{ MV}$ . Denn die größere Erosion bewirkt flachere Tiefenprofile, was durch die stärker

abfallenden Produktionsraten der niedrigeren Rigidities wettgemacht wird und einen Fit gleicher Qualität bewirkt.

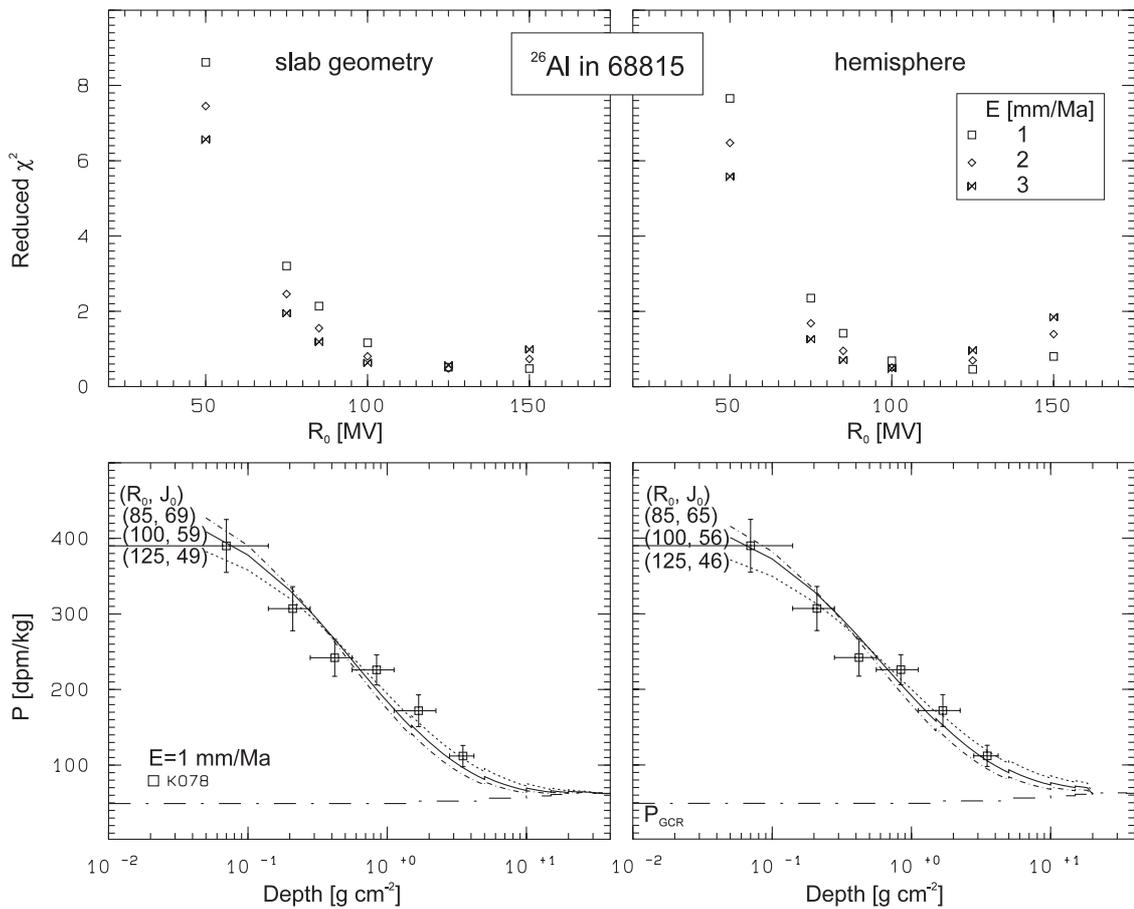


Abbildung 7.22 Experimentelle [K078] und theoretische  $^{26}\text{Al}$ -Produktionsraten in 68815 (unten) und die reduzierten  $\chi^2$  in Abhängigkeit von  $R_0$ , die mit dem LSA der Rechnungen an die experimentellen Daten bestimmt wurden (oben). Eingezeichnet sind die Ergebnisse für die Halbebenen- (links) und die Halbkugelgeometrie (rechts).

Auch die von Rao et al. [RA94] in 68815 gemessenen Tiefenprofile der Edelgase zeigen eine deutlich durch die SCR-Produktion bestimmte Signatur und eignen sich zur Extraktion von  $(R_0, J_0)$  durch LSA. Allerdings sind gerade die zwei äußersten Produktionsraten mit Einschränkungen hinsichtlich ihrer Eingabe in das LSA belegt. Der Meßwert der geringsten Tiefe  $d=0.07 \text{ g cm}^{-2}$  weist große Unsicherheiten auf und wird daher von Rao et al. [RA94] bei der Bestimmung von  $(R_0, J_0)$  nicht weiter diskutiert. Für die Probe mit  $d=0.21 \text{ g cm}^{-2}$  dagegen fällt das Verhältnis  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  aus dem Trend heraus, daß  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  mit zunehmender Tiefe abnimmt. Eine Erklärung hierfür wäre ein Olivineinschluß in der Probe [RA94], der infolge der dann gegenüber den anderen Proben abweichenden chemischen Komposition die Anwendung dieses Datenpunktes für die Berechnung von  $(R_0, J_0)$  unbrauchbar machen würde.

Da gerade die Meßwerte in diesem äußersten Bereich wesentlich die Signatur des SCR-Tiefenprofils mitbestimmen, wurden die Werte  $(R_0, J_0)$  für verschiedene Kombinationen der Berücksichtigung dieser oberflächennahen Datenpunkte berechnet. Die Ergebnisse dazu zeigt Abbildung 7.23.

Betrachtet man die Unsicherheiten der resultierenden Flußdichten  $J_0$ , so sind diese bei Vernachlässigung nur des Wertes bei  $d=0.07 \text{ g cm}^{-2}$  am höchsten und sie beträgt sogar für den Fit mit dem geringsten  $\chi^2$  ( $R_0=85 \text{ MV}$ ) 35 %. Daher wird diese Berechnungsart wie schon in der Arbeit von Rao et al. [RA94] verworfen. Zugunsten der Auswahl einer der beiden anderen Fallstudien läßt sich kein Argument finden.

Im folgenden werden nur die Ergebnisse bei Vernachlässigung der beiden obersten Datenpunkte gezeigt. Zu bedenken ist aber, daß die Ergebnisse des LSA für die in Abbildung 7.23 gezeigte Berücksichtigung aller Datenpunkte davon um bis zu 20 % abweichen.

Die gemessenen und theoretischen Produktionsraten für  $^{21,22}\text{Ne}$  sind für die angegebene Wahl in Abbildung 7.24 gezeigt. Obwohl die reduzierten  $\chi^2$  für beide Isotope  $\chi^2 \lesssim 1$  sind, ist die Modellierung der gemessenen Daten unzulänglich. Dies zeigt der Datenpunkt bei  $12 \text{ g cm}^{-2}$ , mit dem beurteilt werden kann, wie gut die GCR-Komponente  $P_{\text{GCR}}$  für diesen Stein berechnet wird. Für beide Isotope liegt  $P_{\text{GCR}}$  innerhalb der experimentellen Unsicherheit oberhalb des Meßwertes bei  $d = 12 \text{ g cm}^{-2}$ .  $P_{\text{GCR+SCR}}$  zeigt infolge des nicht vernachlässigbaren SCR-Anteiles in dieser Tiefe auch für niedrige  $R_0$  eine noch größere Überschätzung für diesen Meßwert. So liegen die theoretischen Produktionsraten für  $R_0 = 85 \text{ MV}$  für beide Isotope um 7-8 % höher als die experimentellen.

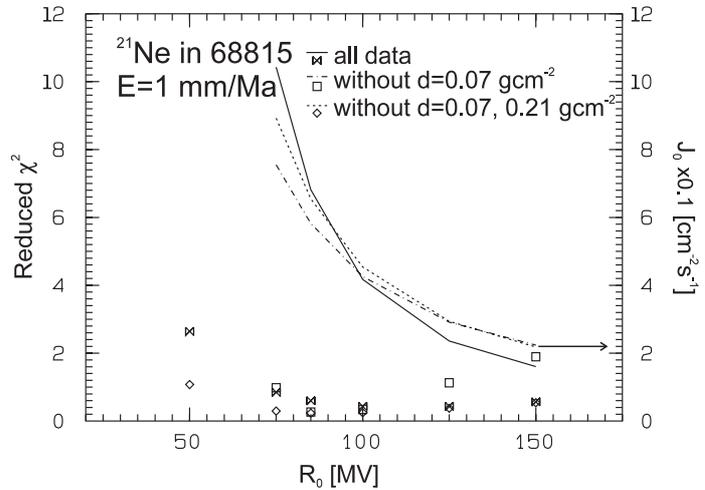


Abbildung 7.23 Verteilung der reduzierten  $\chi^2$  und der Flußdichten  $J_0$  in Abhängigkeit der Rigidity  $R_0$  für drei verschiedene Fälle der Berücksichtigung der oberflächennahen Meßwerte von  $^{21}\text{Ne}$  in 68815. Den Rechnungen ist die Halbebenengeometrie zugrunde gelegt. Der  $\chi^2$ -Wert für „ohne  $d = 0.07 \text{ g cm}^{-2}$ “ und  $R_0 = 50 \text{ MV}$  liegt bei 24.8.

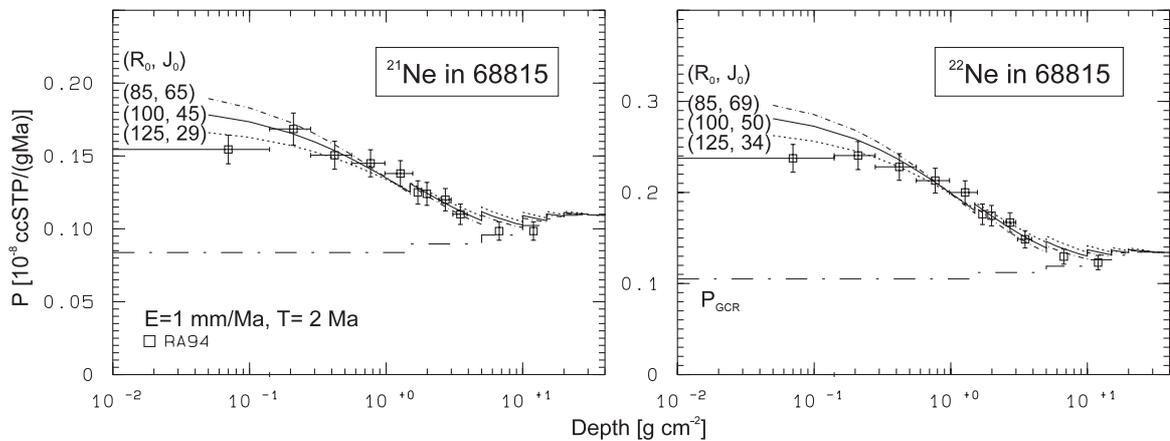


Abbildung 7.24 Experimentelle [RA94] und theoretische Produktionsraten für  $^{21,22}\text{Ne}$  in 68815. Gezeigt sind die Rechnungen der Halbebenengeometrie und unter Vernachlässigung der beiden oberflächennahen Werte beim LSA. Die absolute experimentelle Unsicherheit ist in [RA94] nicht dokumentiert und wurde daher auf Grund der dort angegebenen relativen Unsicherheit von etwa 5 % zu 6.4 % abgeschätzt.

Eine Erklärung für dieses physikalisch nicht sinnvolle Ergebnis könnte die Tatsache sein, daß  $P_{\text{GCR}}$  mit einer Halbebene modelliert wurde, eine Halbkugelgeometrie jedoch eine bessere Näherung für das Gestein wäre. Oben wurde bereits angesprochen, daß sich die  $P_{\text{GCR}}$  bei Anwendung einer Halbkugel gegenüber der Halbebenengeometrie infolge des unterschiedlichen Verlustes der Teilchen aus dem Gestein verschieben. Reedy und Masarik [RE95] berechnen für die Halbkugeln mit Radien kleiner als  $35 \text{ g cm}^{-2}$  geringere Produktionsraten als in gleichen Tiefen der Halbebene. Ohne die Beurteilung des Fits mit der  $\chi^2$ -Verteilung signifikant zu ändern (reduziertes  $\chi^2 \lesssim 1$  für  $R_0 = 75\text{-}150 \text{ MV}$  und  $E = 1 \text{ mm/Ma}$ ), würde beispielsweise eine Verschiebung der  $P_{\text{GCR}}$  um 10 % nach unten ( $\phi_{\text{GCR}} = 3.46 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) die  $J_0$ -Werte für  $^{21}\text{Ne}$  um  $\sim 20 \%$  und für  $^{22}\text{Ne}$  um  $\sim 14 \%$  anheben.

Bei der Behandlung der GCR-Produktionsrate für  $^{81}\text{Kr}$  in 68815 (Kapitel 7.5.2) trat ebenfalls das Problem auf, daß die modellierten Werte gegenüber den experimentellen zu hoch lagen. Während für  $^{81}\text{Kr}$   $P_{\text{GCR}}$  jedoch etwa 20 % zu hoch liegt - eine genauere Angabe der Abweichung ist für  $^{81}\text{Kr}$  wegen des unbekanntenen SCR-Anteiles nicht möglich -, stimmt im Gegensatz dazu die GCR-Produktionsrate für die Neonisotope noch innerhalb der Unsicherheiten der experimentellen Daten mit diesen überein. Nur die Modellierung der GCR-Produktionsrate mit der genauen Steingeometrie kann klären, ob dieser Unterschied zwischen Neon und Krypton allein auf den Geometrieeffekt zurückzuführen ist oder ob er weitere Ursachen hat.

Wie sich der Übergang von der Ebenengeometrie auf die der Halbkugel bei der Simulation der SCR-Produktionsraten auf die Erniedrigung der  $J_0$ -Werte auswirkt, zeigt Tabelle 7.6. Für die Neonisotope ist die Absenkung der Flußdichten  $J_0$  gegenüber  $^{26}\text{Al}$  höher, da im Vergleich zu  $^{26}\text{Al}$  für  $^{21,22}\text{Ne}$  Messungen tieferliegender Proben vorliegen, durch die sich die mit der Tiefe zunehmende Abweichung der Flußdichte der SCR-Protonen zwischen Halbebene und Kugel (Abbildung 7.21) stärker auswirkt.

Tabelle 7.6 Änderung der  $J_0$ -Werte ( $R_0 = 100$  MV) bei Anwendung der zwei Geometrieoptionen. Die eingetragenen  $J_0$ -Werte sind gerundet. Die Prozentwerte zum Vergleich der Geometrien sind jedoch mit den exakten Ergebnissen für  $R_0 = 75$ -125 MV und  $E = 1$  mm/Ma berechnet, so daß die  $J_0$  Änderung nicht genau der prozentualen Größe entspricht.

Nuklid	Ebene $J_0$ [ $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ]	⇒ Erniedrigung	Halbkugel $J_0$ [ $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ]
$^{26}\text{Al}$	$59 \pm 8$	~ 7 %	$56 \pm 6$
$^{21}\text{Ne}$	$45 \pm 6$	~ 13 %	$40 \pm 7$
$^{22}\text{Ne}$	$50 \pm 4$	~ 13 %	$44 \pm 5$

Die Auswahl der über die letzten 2 Ma gemittelten Parameter ( $R_0$ ,  $J_0$ ) sollte nicht nur auf die vorliegenden Ergebnisse des Steins 68815 zurückgreifen, sondern auch die Resultate der zwei weiteren Steine 61016 und 64455 des South Ray-Kraters berücksichtigen. Diese werden im folgenden vorgestellt.

### 7.6.3 Der Stein 61016

Für den Stein 61016 wurden Rechnungen für die Nuklide  $^{21,22}\text{Ne}$  durchgeführt. Die chemische Komposition wurde der Arbeit von Rao et al. [RA93] (in %: O = 46.2 (zu 100 % addiert), Mg = 0.04, Al = 19.4, Si = 20.2, Ca = 14.0, Fe = 0.13) entnommen. Diese entspricht einer Plagioklas Zusammensetzung der untersuchten Proben, mit der auch die spektralen Flußdichten im Gestein berechnet wurden. Der gesamte Stein besteht jedoch nicht nur aus Plagioklas; wie Testrechnungen mit einem Eisengehalt von 4 % sowie Untersuchungen von Bodemann [BO93] zeigten, sollte eine andere chemische Zusammensetzung des Gesteins jedoch nur einen geringen Einfluß auf die spektralen Flußdichten haben (< 5 %). Die Dichte des Gesteins beträgt  $2.65 \text{ gcm}^{-3}$  [GA96B].

Die Probenentnahme erfolgte für diesen Stein nicht wie im Falle von 68815 von der obersten Spitze des Steins, sondern von einer um  $30^\circ$  zur Seite geneigten Position [RA93]. Daher wurde für die SCR-Modellierung nur die Halbkugelgeometrie mit einem Radius von  $34 \text{ gcm}^{-2}$  benutzt, welcher aus der Masse und der Dichte von 61016 berechnet wurde. Die Berechnung der SCR-Produktionsraten erfolgte entsprechend in einer um  $30^\circ$  gegenüber dem in Abbildung 7.21 gezeigten Core geneigten, zur Kugeloberfläche senkrechten Bohrung. Für die Probe direkt an der Oberfläche ( $0 \text{ gcm}^{-2}$ ) ist die Flußdichte  $J_0$  dadurch gegenüber der Oberflächenposition in Abbildung 7.21 um etwa 15 % niedriger.

Die GCR-Produktionsrate wurde weiterhin mit der Halbbebenengeometrie berechnet und es wurde keinerlei Geometriekorrektur daran vorgenommen. Dafür wären neue GCR-Simulationsrechnungen mit Monte-Carlo-Methoden nötig gewesen, für die die Programmsysteme nicht zur Verfügung standen. Der Arbeit von Reedy und Masarik [RE95] folgend sollte die Produktionsrate in der Halbkugel des angegebenen Radius geringer als in der Ebene sein. Dies gilt jedoch nur für die Corebohrung senkrecht zur Mondoberfläche (Abbildung 7.21). Für die um  $30^\circ$  geneigte Bohrung müßte für eine Quantifizierung der Produktionsrate eine separate Modellierung vorgenommen werden. Die folgenden Betrachtungen sind daher nur unter der Annahme gültig, daß die Produktion in der Halbebene nicht zu stark von der wahren Produktion abweicht.

Die Ergebnisse der Modellierung sind für  $^{21}\text{Ne}$  in Abbildung 7.25 gezeigt. Für die Rigidities 100, 125 und 150 MV ergeben sich reduzierte  $\chi^2$  kleiner als eins. Dies gilt auch für  $^{22}\text{Ne}$ , wobei die  $J_0$ -Werte für diese drei Rigidities für beide Isotope innerhalb von 7 % übereinstimmen.

Der bessere Fit für die höheren Rigidities zeigt sich insbesondere für die tieferen Proben, deren Meßwerte nur gut beschrieben werden, wenn ein entsprechend hoher SCR-Beitrag vorliegt. Für die tiefstgelegene Probe bei  $d = 2.6 \text{ cm}$  und für  $R_0 = 85 \text{ MV}$  beträgt der SCR-Anteil 13 % und steigt über 16 % bei  $R_0 = 100 \text{ MV}$  bis zu 19 % für  $R_0 = 125 \text{ MV}$  an.

Wie verhält sich dieses Ergebnis für 61016 im Vergleich zu den  $J_0$ -Werten, die aus 68815 berechnet wurden? Der Vergleich der Halbkugelwerte für  $R_0 = 100 \text{ MV}$  ergibt nach Tabelle 7.6 für 68815 eine um 26 % niedrigere Flußdichte. Der erste Unterschied zwischen beiden Gesteinen, der zur Diskussion dieser Diskrepanz angeführt werden muß und der auch in Abbildung 7.25 und 7.24 deutlich ersichtlich ist, sind die infolge der verschiedenen Chemien um einen Faktor  $\sim 1.14$  voneinander abweichenden GCR-Produktionsraten  $P_{\text{GCR}}$ . Tabelle 7.7 verdeutlicht die Ursachen hierfür anhand der Beiträge der Haupttargetelemente zu  $P_{\text{GCR}}$ .

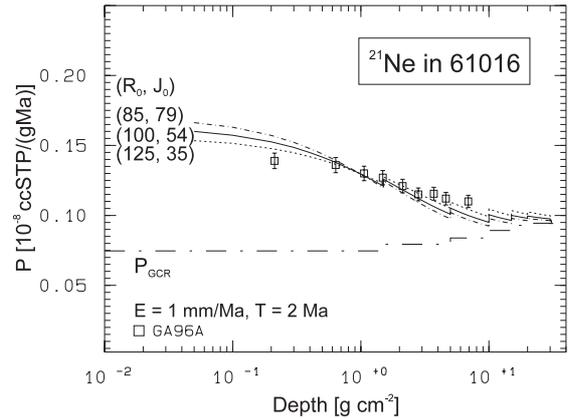


Abbildung 7.25 Experimentelle [GA96A] und theoretische Produktionsraten für  $^{21}\text{Ne}$  in 61016. Die absolute experimentelle Unsicherheit ist in [GA96A] nicht dokumentiert und wurde daher zu 4 % abgeschätzt. Die experimentellen Daten wurden aus den Abbildungen in [GA96A] abgelesen.

Tabelle 7.7 Elementarproduktionsraten  $P_{\text{ele}}$  und Gehalte C für Mg, Al und Si sowie die Gesamtproduktionsrate  $P_{\text{GCR}}$  für  $^{21}\text{Ne}$  in den Steinen 68815 und 61016 für die Tiefe 5 - 10  $\text{g cm}^{-2}$ ; die Produktionsraten sind mit  $\phi_{\text{GCR}} = 3.86 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$  normalisiert.

	$P_{\text{ele}}$ [ $10^{-8} \text{ cc}/(\text{g Ma})$ ]	68815		61016	
		C [%]	$C \cdot 0.01 \cdot P_{\text{ele}}$ [ $10^{-8} \text{ cc}/(\text{g Ma})$ ]	C [%]	$C \cdot 0.01 \cdot P_{\text{ele}}$ [ $10^{-8} \text{ cc}/(\text{g Ma})$ ]
Mg	0.582	3.74	0.0218	0.04	0.00023
Al	0.219	15.0	0.0327	19.4	0.0427
Si	0.175	20.8	0.0363	20.2	0.0353
$P_{\text{GCR}}$ [ $10^{-8} \text{ cc}/(\text{g Ma})$ ]			0.0958		0.0839

Im Stein 61016 trägt Mg in vernachlässigbaren Maße zur Produktion bei, während es in 68815 zu 23 % an der Erzeugung beteiligt ist. So verschiebt sich der Anteil von Al und Si von jeweils etwa 30 % in 68815 zu ungefähr 50 % beziehungsweise 40 % in 61016. Infolge des fehlenden Mg-Anteiles ist die Produktionsrate in 61016 daher geringer als in 68815. Die gemessene  $^{21}\text{Ne}$ -Produktionsrate liegt für 68815 für die in Tabelle 7.7 betrachtete Tiefe bei  $^{21}\text{P} = 0.985 \cdot 10^{-8} \text{ cc}/(\text{g Ma})$  und für 61016 ist diese noch um etwa 10 % höher. Dieser gegenläufige Trend zwischen den experimentellen Daten der tiefer liegenden Proben und der berechneten  $P_{\text{GCR}}$  trägt zur Diskrepanz der berechneten Flußdichte bei.

Zusätzlich dazu bewirkt die geneigte Position der Proben von 61016 im Vergleich zu 68815 höhere Flußdichten  $J_0$ . Eine durch die oben angesprochenen Geometrieeffekte in 61016 im Vergleich zur wahren  $P_{\text{GCR}}$  zu niedrig berechnete  $P_{\text{GCR}}$  könnte weiterhin zur Unstimmigkeit beitragen.

Gegenüber dieser Arbeit geben Rao et al. [RA94] für 68815 in einer Tiefe von 7  $\text{g cm}^{-2}$  eine theoretisch berechnete Produktionsrate von  $^{21}\text{P} \approx 0.9 \cdot 10^{-8} \text{ cc}/(\text{g Ma})$  an, während Garrison et al. [GA96A] 10 % SCR-Beitrag in der tiefsten Probe von 61016 als sinnvoll ansehen und so einen angepaßten GCR-Anteil von  $^{21}\text{P}_{\text{GCR}} \approx 1.0 \cdot 10^{-8} \text{ cc}/(\text{g Ma})$  bekommen. Dies entspricht einer Diskrepanz von 20 %, die durch andere Effekte als die chemische Komposition verursacht sein muß, die die Produktionsrate in 61016 heraufsetzen. Eine Begründung hierfür wurde von Garrison et al. [GA96A] jedoch nicht gegeben.

In Anbetracht der den SCR-Rechnungen dieser Arbeit zugrundeliegenden genauen und mit Dicktarget-experimenten validierten Wirkungsquerschnittsbasis [LY98B] wird die von Garrison et al. [GA96A] gewählte variable Anpassung der modellierten  $P_{\text{GCR}}$  nicht unterstützt. Zur Klärung des Sachverhaltes muß die akkurate Berechnung der  $P_{\text{GCR}}$  durch die Modellierung mit den individuellen Halbkugelgeometrien vorgenommen werden.

### 7.6.4 Der Stein 64455

Für den Stein 64455 wurde das Tiefenprofil des Nuklids  $^{26}\text{Al}$  modelliert. Die chemische Komposition wurde der Arbeit von Reedy [RE98] sowie für Kobalt und Nickel aus [HE91] entnommen (in %: O = 45.0, Na = 0.35, Mg = 5.0, Al = 12.8, Si = 21.8, K = 0.1, Ca = 9.6, Ti = 0.30, Cr = 0.08, Mn = 0.06, Fe = 4.7, Co = 0.0048, Ni = 0.076). Die Dichte des Gesteins beträgt  $2.74 \text{ gcm}^{-3}$  [NI95A] und für die Halbkugel wurde ein Radius von  $7 \text{ gcm}^{-2}$  [RE98] gewählt.

Das experimentelle Tiefenprofil für das Nuklid  $^{26}\text{Al}$  zeigt Abbildung 7.26 zusammen mit der Modellierung für die Halbebenen- und die Halbkugelgeometrie. Der Fit der theoretischen Daten wurde nur an die äußersten Daten von [NI95A] vorgenommen und zeigt im Falle der Halbebene das geringste reduzierte  $\chi^2$  von  $\chi^2 = 2.4$  für  $R_0 = 125 \text{ MV}$ . Für die Halbkugel ergibt sich der beste Fit für  $R_0 = 100 \text{ MV}$  und  $85 \text{ MV}$  mit einem reduzierten  $\chi^2$  von jeweils  $\chi^2 = 4.9$ .

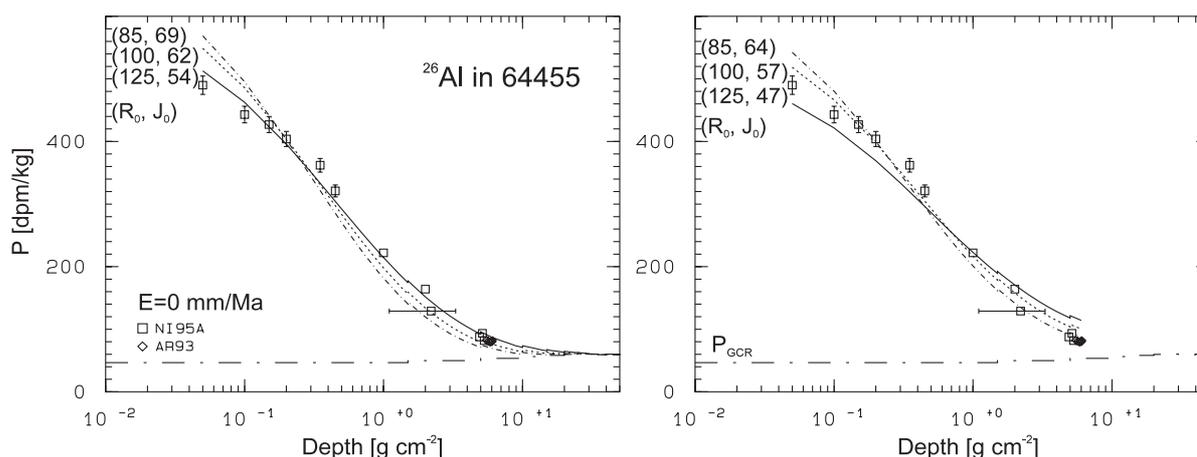


Abbildung 7.26 Experimentelle [NI95A, AR93] und theoretische  $^{26}\text{Al}$ -Produktionsraten in 64455. Die experimentellen Daten wurden aus den Abbildungen in [AR93, NI95A] abgelesen. Die theoretische Modellierung ist für die Halbebene (links) und die Halbkugelgeometrie (rechts) gezeigt.

Im Vergleich zum Stein 68815 ergibt sich für 64455 ein analoges Verhalten. Mit dem Wechsel zur Halbkugelgeometrie verschiebt sich der beste Fit zu niedrigeren Rigidities, wobei das größere reduzierte  $\chi^2$  für 64455 auf die geringeren experimentellen Unsicherheiten zurückzuführen ist. Die aus den  $^{26}\text{Al}$ -Daten berechneten Flußdichten  $J_0$  stimmen für beide Gesteine für die in Abbildung 7.22 und 7.26 gezeigten Rigidities gut überein - im Gegensatz zur Modellierung der Neonisotope in 68815 und 61016. Die Modellierung der  $^{26}\text{Al}$ -Werte in 64455 und 68815 unterscheidet sich jedoch darin, daß das reduzierte  $\chi^2$  für 68815 sowohl für die Ebenengeometrie als auch für die Halbkugel im Minimum kleiner als eins ist und somit für *beide* Geometrien ein guter Fit möglich ist. Im Gegensatz dazu ist der beste Fit für die Halbkugel von 64455 gegenüber der Halbebene schlechter. Da beide Geometrien nur Grenzfälle zur Beschreibung des realen Gesteins sind, wird für die folgende Diskussion die Halbebene bevorzugt.

Das Tiefenprofil von  $^{26}\text{Al}$  in 64455 liefert in der Reihe der behandelten Steine 68815 und 61016 den letzten Beitrag der Flußdichten  $J_0$  in Abhängigkeit von  $R_0$ , mit dem sich nun aus der Gesamtheit der

berechneten ( $R_0$ ,  $J_0$ )-Werte die Möglichkeit zur Festlegung eines besten über die letzten 2 Ma gemittelten ( $R_0$ ,  $J_0$ )-Punktes untersuchen läßt.

Abbildung 7.27 zeigt die Ergebnisse der LSA der in diesem Kapitel für die drei Steine vorgestellten Tiefenprofile im Überblick. Die Rigidity  $R_0 = 50$  MV wird als Parameter ausgeschlossen, da sich für sie für keines der Tiefenprofile ein guter Fit ergibt.

Die Auswahl eines besten Satzes ( $R_0$ ,  $J_0$ ) aus den gezeigten Werten in Abbildung 7.27 ist nicht möglich, da sich insgesamt aus der Beurteilung mit der Qualität des Fits unter Anwendung des Kriteriums reduziertes  $\chi^2 < 1$  kein einheitliches Bild ergibt. Während der Fit für  $^{26}\text{Al}$  für die höheren Rigidities  $R_0 = 100 - 125$  MV am besten ist, lassen die Neonisotope aus 68815 keinerlei Auswahl mit Hilfe der Qualität des LSA zu. Auch die Ergebnisse des Steins 61016 würden für die höheren Rigidities sprechen, jedoch sind die resultierenden Flußdichten  $J_0$  der Neonisotope für die hohen Rigidities nicht mit den Flußdichten für  $^{26}\text{Al}$  verträglich. Darüber hinaus müßten vor einer Auswahl von ( $R_0$ ,  $J_0$ ) die Diskrepanzen bei der Modellierung der Neonisotope in 61016 und 68815 geklärt werden.

Es können vielfältige Gründe für diese negative Aussage angeführt werden. Wie schon des öfteren erwähnt wurde, spielt die Benutzung einer akkuraten Geometrie bei der Modellierung sowohl des GCR-Anteiles als auch des SCR-Beitrages eine besondere Rolle. Für die SCR-Rechnungen wurde für die zwei Grenzfälle der Ebene und der Halbkugel gezeigt, wie sich diese beiden Optionen auf  $J_0$  und die Qualität des Fits auswirken. Tatsächlich sind dies jedoch nur Annäherungen an die realen Steingeometrien, zur Klärung des Problems wäre die Eingabe der wahren Steingeometrie erforderlich.

Dies gilt in gleichem Maße für die GCR-Modellierung, für die in dieser Arbeit nur die Halbebenen-geometrie betrachtet werden konnte. Für die unmittelbare Beurteilung der theoretischen Beschreibung der GCR-Produktionsrate für ein Tiefenprofil wären insbesondere tiefer liegende Meßpunkte mit reiner GCR-Produktion erforderlich. Für die Neonisotope könnten darüber hinaus GCR- und SCR-Modellrechnungen für  $^{20,21,22}\text{Ne}$  und die berechneten Verhältnisse  $^{20}\text{P}/^{22}\text{P}$  sowie  $^{21}\text{P}/^{22}\text{P}$  ein interessanter Beitrag zur Interpretation der gemessenen Neonverhältnisse im Dreisisotopenplot  $^{20}\text{P}/^{22}\text{P}$  gegen  $^{21}\text{P}/^{22}\text{P}$  sein, mit dem die Verhältnisse  $(^{21}\text{P}/^{22}\text{P})_{\text{GCR+SCR}}$  extrapoliert werden [RA93, RA94].

Eine Verschiebung der GCR-Produktionsrate würde sich vor allem auf die Flußdichte  $J_0$  auswirken und könnte dazu beitragen, daß sich die Flußdichten guter Fits in Abbildung 7.27 für *alle* Nuklide in einem  $R_0$ -Bereich überlappen. Für dessen Auswahl sollten dann auch die Ergebnisse der Modellierungen der gemessenen Tiefenprofile von  $^{53}\text{Mn}$  und  $^{38}\text{Ar}$  herangezogen werden.

### 7.6.5 Ausblick

Zur Festlegung des langzeitgemittelten Parametersatzes ( $R_0$ ,  $J_0$ ) müssen weitere Untersuchungen folgen, die die oben diskutierten Aspekte bei der Interpretation von Tiefenprofilen in lunaren Gesteinen berücksichtigen. Wird dieses ( $R_0$ ,  $J_0$ ) vorliegen, so sollten damit Modellrechnungen für SCR-Produktionsraten in Meteoriten durchgeführt werden. Dabei ist zu beachten, daß das über die letzten 2 Ma gemittelte SCR-Spektrum nur in erster Näherung auf Meteorite anwendbar ist, da die Bestrahlungsalter letzterer im allgemeinen um ein Vielfaches länger sind.

Zum einen könnten die SCR-Beiträge in kleinen Meteoriten untersucht werden, für die die präatmosphärische Geometrie gut bekannt ist. Dafür könnten die kleinen Meteorite Bansur, Udaipur und Madhipura [VO88] dienen. Die in ihnen gemessenen Daten würden eine Beurteilung hinsichtlich der Konsistenz mit

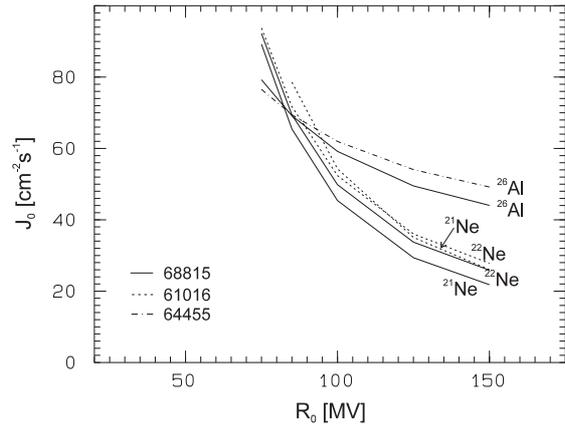


Abbildung 7.27  $J_0$ -Werte in Abhängigkeit von  $R_0$  für Tiefenprofile der Steine 61016 ( $E = 1$  mm/Ma), 64455 und 68815. Für 64455 ( $E = 0$  mm/Ma) und 68815 ( $E = 1$  mm/Ma) sind die Ergebnisse der Halbebenen-geometrie gezeigt.

den berechneten SCR-Produktionsraten erlauben. Eine eigenständige Extraktion von  $(R_0, J_0)$  aus den in Meteoriten gemessenen Werten ist nicht möglich, da die dafür nötige charakteristische abfallende Signatur der Tiefenprofile infolge der Ablation beim Fall der Meteorite nur selten bewahrt bleibt.

Auch für Meteorite werden SCR-Effekte nachgewiesen [NI95B], von denen nur Einzelstücke vorliegen und für die eine genaue Bestimmung der präatmosphärischen Geometrie in dem Maße wie für die oben angesprochenen Meteorite sowie die Messung von Tiefenprofilen nicht möglich ist. In dieser Arbeit wurde dazu eine Literaturrecherche nach Meteoriten mit SCR-Produktion durchgeführt, für die als Suchkriterium vor allem ein hohes kosmogenes  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  der Neonisotope diene.

Daraufhin wurden Messungen der Radionuklide  $^{26}\text{Al}$  und  $^{10}\text{Be}$  [ME98] beziehungsweise  $^{14}\text{C}$  [NE97B] an Proben von fünf Meteoriten vorgenommen, für die bereits Messungen der Neonisotope  $^{21,22}\text{Ne}$  mit hohem  $^{22}\text{P}/^{21}\text{P}$  vorlagen. Die Ergebnisse werden nur mit SCR-Beiträgen zur Produktion erklärt. Ausstehende Messungen für  $^{53}\text{Mn}$  werden die Datenbasis für diese Meteorite ergänzen.

Der Vergleich der SCR+GCR-Modellrechnungen unter Anwendung der  $(R_0, J_0)$ -Werte aus lunaren Gesteinen mit diesen Meßwerten wird zeigen, wie gut die Interpretation der Produktionsraten in Meteoriten hinsichtlich der Bestimmung von Abschirmtiefen erfolgen kann.

## 8 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden zur Bestimmung integraler Wirkungsquerschnitte für die Restkernproduktion in Neutronen-induzierten Reaktionen Aktivierungsexperimente mit quasimonoenergetischen Neutronen mittlerer Energien bis hinauf zu 180 MeV durchgeführt. Da es bislang in unserer Arbeitsgruppe keine Möglichkeit für derartige Untersuchungen gab, wurde in einem ersten Schritt die Machbarkeit solcher Experimente an der Neutronenbeamline des The Svedberg Laboratoriums (TSL), Uppsala (Schweden), untersucht und festgestellt. Auf Basis dieser positiven Ergebnisse wurde dort eine Anlage installiert, mit der nun routinemäßig Aktivierungsexperimente mit  ${}^7\text{Li}(p,n)$ -Neutronen einer Peakflußdichte von etwa  $0.5 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1} \mu\text{A}^{-1} (\text{mmLi})^{-1}$  durchgeführt werden können.

Daraufhin wurde im Rahmen einer europäischen Kollaboration eine langfristig angelegte Bestrahlungsreihe begonnen; erst nach deren Abschluß können dann die Anregungsfunktionen mittels Entfaltungsmethoden bestimmt werden. In dieser Arbeit wurden dafür aus den ersten Experimenten insgesamt 550 Responseintegrale an den kosmophysikalisch interessanten Elementen C, O, Al, Si, Fe, Co, Ni, Cu, Ag, Te und Pb mit einer minimalen Unsicherheit von etwa 10 %  $\gamma$ -spektrometrisch gemessen. Im Gegensatz zur sonst am ZSR üblichen Meß- und Auswertepaxis erforderten diese  $\gamma$ -spektrometrischen Messungen sowie die Auswertungen die Einführung neuer Verfahren. Diese umfaßten die Berücksichtigung echter Koinzidenzen, der Selbstabsorption sowie der Eigenschaft des Targets als Volumenprobe.

In Ergänzung zu den TSL-Experimenten wurden an der Université Catholique de Louvain ebenfalls dieselben Targetelemente, aber mit Neutronen mit Peakenergien unterhalb von 70 MeV bestrahlt. Dabei wurde die spektrale Flußdichte der Neutronen in Kollaboration mit der PTB experimentell bestimmt.

Da eine solche Messung am Ort der Bestrahlungskammer am TSL nicht möglich ist, wurde eine semiempirische Methode entwickelt, mit der die spektralen Flußdichten physikalisch sinnvoll erstellt werden. Diese dienen als Eingangsdaten für LAHET-Rechnungen zur Simulation des Transports der Neutronen durch die TSL-Bestrahlungseinrichtung, um Aussagen über Änderungen der spektralen Flußdichte im Targetstapel treffen zu können. Daraus resultierende Diskrepanzen von bis zu 14 % zwischen den theoretischen und den experimentellen Aktivitätsverläufen zeigen, daß die theoretische Modellierung das experimentelle Flußdichtemonitoring über den Stapel nicht ersetzen kann.

Mit dem Ziel, die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie zu modellieren, wurden die Anregungsfunktionen Protonen-induzierter Reaktionen ausgewählter Produkte für Protonenenergien zwischen 60 MeV und 2.6 GeV durch Messungen vervollständigt. In Zusammenarbeit mit dem Centre d'Etudes Nucléaires Bordeaux, Bordeaux (Frankreich), wurden Wirkungsquerschnitte der langlebigen und stabilen Krypton-Isotope für Rb, Sr, Y und Zr gemessen. Darüber hinaus lieferte die Auswertung von Ti-, Fe- und Ni-Targets weitere 338 Wirkungsquerschnitte, wobei insbesondere die Daten für  ${}^{44}\text{Ti}$  jetzt einen konsistenten Datensatz bilden. Mit X-Spektrometrie chemisch unbehandelter Eisentargets wurden erstmals in unserer Arbeitsgruppe Wirkungsquerschnitte für  ${}^{55}\text{Fe}$  bestimmt. Ergänzend dazu wurden mit Messungen von Dicktargetproduktionsraten der Krypton-Isotope sowie von  ${}^{44}\text{Ti}$  mit Hilfe von Entfaltungsmethoden Anregungsfunktionen Neutronen-induzierter Reaktionen bereitgestellt.

Die Modellierung der Produktionsraten von  ${}^{57}\text{Co}$ ,  ${}^{54}\text{Mn}$ ,  ${}^{22}\text{Na}$  und  ${}^{44}\text{Ti}$  in Meteoroiden durch die GCR hatte Aussagen über den spatialen Gradienten der GCR beziehungsweise die Aktivierung über Gleissberg Zyklen zum Ziel. Die großen Unsicherheiten der gemessenen Daten von Meteoriten stehen jedoch sinnvollen Interpretationen hierzu noch im Wege. Dagegen beschreiben die Modellrechnungen die GCR-Produktion der Krypton-Isotope in Knyahinya und St. Severin gut, wenn die chemische Komposition als Eingabe in die Rechnungen eine gute Qualität hat. In Zukunft sollten die bisher für die  ${}^{81}\text{Kr}$ -Kr-Datierung benutzten empirischen Korrelationen durch die physikalisch sinnvoll berechneten Zusammenhänge ersetzt werden.

Zur Bestimmung des langzeitgemittelten SCR-Spektrums wurden  ${}^{22,21}\text{Ne}$ - und  ${}^{26}\text{Al}$ -Tiefenprofile von Oberflächenproben lunarer Gesteine modelliert. Es wurde jedoch kein Parametersatz gefunden, der *alle* Daten konsistent beschreibt. Rechnungen für weitere Nuklide ( ${}^{53}\text{Mn}$ ,  ${}^{38}\text{Ar}$ ) und die Berücksichtigung der exakten Steingeometrie bei der SCR- und GCR-Modellierung sind zur Klärung des Problems nötig.

## Literaturverzeichnis

- [AH98] I. Ahmad, G. Bonino, G. Cini Castagnoli, S.M. Fischer, W. Kutschera, M. Paul, *Phys. Rev. Lett.* **C80** (1998) 2550
- [AL72] R.G. Alsmiller jr., R.T. Santaro, J. Barish, H.C. Claiborne, ORNL-RSIC-35 (1972)
- [AL90] D.E. Alburger, G. Harbottle, *Phys. Rev.* **C41** (1990) 2320
- [AM92] W. Amian, P. Cloth, P. Dragovitsch, V. Drüke, D. Filges, M.M. Meier, in: S.M. Qaim (ed.): *Proc. Int. Conf. Nucl. Data for Science and Technology*, Springer Verlag, Berlin (1992) 696
- [AN72] D.S. Andreev, K.I. Erokhina, V.S. Zvonov, I.Kh. Lemberg, *Instr. Expt. Techn.* **25** (1972) 1358
- [AN77] H.H. Andersen, J.F. Ziegler, *Hydrogen stopping powers in all elements*, Pergamon Press, New York (1977)
- [AN96] L.-O. Andersson, et al., *TSL Annual Report 1994-1995* (1996) 8
- [AN97] F.C. Anyaegbunam, in: G. Reffo, A. Ventura, C. Grandi (eds.), *Proc. Int. Conf. Nucl. Data for Science and Technology*, Trieste, 19-24 May 1997, *IPS Conf. Proc.* 59 Bologna (1997) 1700
- [AR93] J.R. Arnold, C.P. Kohl, K. Nishiizumi, *LPSC XXIV* (1993) 39
- [BA68] C.J. Batty, B.E. Bonner, E. Friedmar, C. Tschalär, L.E. Williams, A.S. Clough, J.B. Hunt, *Nucl. Phys.* **A120** (1968) 297
- [BA69] C.J. Batty, B.E. Bonner, A.I. Kilvington, C. Tschalär, L.E. Williams, *NIM* **68** (1969) 273
- [BA75] B.P. Bayhurst, J.S. Gilmore, R.J. Prestwood, J.B. Wilhelmy, N. Jarmie, B.H. Erkila, R.A. Hardekopf, *Phys. Rev.* **C12** (1975) 451
- [BA97] M. Baba, private communication (1997)
- [BE30] H. Bethe, *Ann. Physik* **5** (1930) 325
- [BE32] H. Bethe, *Z. Physik* **76** (1932) 293
- [BE64] K.H. Beckurts, K. Wirtz, *Neutron Physics*, Springer Verlag, Berlin (1964)
- [BE87] M.J. Berger, J.H. Hubbel, U.S. Department of Commerce, National Bureau of Standards, Gaithersburg, MD 20899, *NBSIR 87-3597*, July (1987)
- [BE90] J.K. Beatty, A. Chaikin, *The New Solar System*, Sky Publishing Cor., Cambridge MA and Cambridge University Press, Cambridge (1990)
- [BH81] N. Bhandari, *Proc. Earth Planet. Sci.* **90** (1981) 359
- [BH89] N. Bhandari, G. Bonino, E. Callegari, G. Cini Castagnoli, K.J. Mathew, J.T. Padia, G. Queirazza, *Meteoritics* **24** (1989) 29
- [BH94A] N. Bhandari, private communication to R. Michel (1994)
- [BH94B] N. Bhandari, G. Bonino, G. Cini Castagnoli, C. Taricco, *Meteoritics* **29** (1994) 443
- [BI62] H. Bieri, W. Rutsch, *Helv. Phys. Acta* **35** (1962) 553
- [BI63] S. Biswas, C.E. Fichtel, *Astrophys. J.* **139** (1963) 941
- [BI97] P.L. Biermann, *Nature* **388** (1997) 24
- [BL33] F. Bloch, *Ann. Physik* **16** (1933) 285
- [BL71] M. Blann, *Phys. Rev. Lett.* **27** (1971) 337 + errata *ibid.* 1550
- [BL75] G.E. Blanford, R.M. Fruland, D.A. Morrison, *Proc. Lunar Sci. Conf.* **6** (1975) 3357
- [BL83] M. Blann, J. Bisplinghoff, Lawrence Livermore National Laboratory LLNL Report: UICD 19614 (1983)
- [BO15] N. Bohr, *Phil. Mag.* **30** (1915) 581
- [BO36] N. Bohr, *Nature* **137** (1936) 344
- [BO87] A.S. Botvina, A.S. Iljinov, I.N. Mishustin, J.P. Bondorf, R. Donangelo, K. Sneppen, *Nucl. Phys.* **A475** (1987) 663
- [BO89] R. Bodemann, Diplomarbeit, Universität Hannover (1989)
- [BO92] C.D. Bowman et al., *NIMPR* **A320** (1992) 336
- [BO93] R. Bodemann, Thesis, Universität Hannover (1993)
- [BO95] G. Bonino, G. Cini Castagnoli, N. Bhandari, C. Taricco, *Science* **270** (1995) 1648
- [BO96] R. Bodemann, H. Busemann, M. Gloris, I. Leya, R. Michel, T. Schiekel, U. Herpers, B. Holmqvist, H. Condé, P. Malmberg, *TSL Annual Report 1994-1995* (1996) 36
- [BO98] G. Bonino, G. Cini Castagnoli, P. Della Monica, C. Taricco, N. Bhandari, *MAPS* **33** (1998) A19
- [BR71A] R.L. Brodzinski, L.A. Rancitelli, J.A. Cooper, N.A. Woyman, *Phys. Rev.* **C4** (1971) 1250
- [BR71B] R.L. Brodzinski, L.A. Rancitelli, J.A. Cooper, N.A. Woyman, *Phys. Rev.* **C4** (1971) 1257
- [BR96] P. Brown, A.R. Hildebrand, D.W.E. Green, D. Pagè, C. Jacobs, D. Revelle, E. Tagliaferri, J.

- Wacker, B. Wetmiller, *MAPS* **31** (1996) 502
- [BR97A] J.F. Briesmeister, Ed., LA-12625-M (1997)
- [BR97B] F.L. Bronson, Rapid Radioactivity Measurements in Emergency and Routine Situation Conference (1997) in press
- [BU94] H. Busemann, Diplomarbeit, Universität Hannover (1994)
- [BU97] A. Busse, Diplomarbeit, Universität Hannover (1997)
- [BY89] R. Byrd, W.C. Sailor, *NIM* **A274** (1989) 494
- [CA80] G. Castagnoli, D. Lal, *Radiocarbon* **22** (1980) 133
- [CA93] F. Carminati, R. Klapisch, J.P. Revol, Ch. Roche, J.A. Rubio, C. Rubbia, CERN/AT/93-47 (ET) (1993)
- [CE95] Cosmic ray riddle solved ?, *CERN Courier* **35** (1995) 23
- [CL88] P. Cloth, D. Filges, R.D. Neef, G. Sterzenbach, C. Reul, T.W. Armstrong, B.L. Colborn, B. Anders, H. Brückmann, Report Jül-2203 (1988)
- [CO55] B.L. Cohen, E. Newman, *Phys. Rev.* **99** (1955) 718
- [CO74] T.J. Cohen, P.R. Lintz, *Nature* **250** (1964) 398
- [CO90] H. Condé, S. Hultqvist, N. Olsson, T. Rönngqvist, R. Zorro, J. Blomgren, G. Tibell, A. Håkansson, O. Jonsson, A. Lindholm, L. Nilsson, P.-U. Renberg, A. Brockstedt, P. Ekström, M. Österlund, F.P. Brady, Z. Szefflinski, *Nucl. Instr. Meth.* **A292** (1990) 121
- [CO97] H. Condé, V.P. Eismont, K. Elmgren, A.V. Prokofiev, A.N. Smirnov, Proc. Sec. Int. Conf. on Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications (1997) 613
- [CU63] J.B. Cumming, *Ann. Rev. Nucl. Phys.* **13** (1963) 261
- [CU91] J.L. Culhane and C. Jordan (ed.): *The Physics of Solar Flares*, The Royal Society, London (1991)
- [DA91] G. Dagge, Thesis, Report Jül-2528 (1991)
- [DA94] R. Daunke, Diplomarbeit, Universität Hannover (1994)
- [DE79] K. Debertin, U. Schötzig, *NIM* **158** (1979) 471
- [DE80] K. Debertin, PTB-Ra-12 (1980)
- [DE88] K. Debertin, R.G. Helmer, *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*, North Holland, Amsterdam, Oxford, New York, Tokyo (1988)
- [DE90] K. Debertin, U. Schötzig, PTB-Ra-24 (1990)
- [DE96] B. Deubel, Diplomarbeit, Universität Hannover (1996)
- [DI80] DIN 6814 Teil2, Beuth Verlag, Berlin (1980)
- [DI97] DIN 1319 Teil 4 Entwurf, Beuth Verlag, Berlin, Oktober (1997)
- [DR72] B.J. Droupesky, H.A. O'Brien, Los Alamos Scientific Lab. Report No. LA-5120-PR (1972)
- [DR74] R.J. Drozd, C.M. Hohenberg, C.J. Morgan, C.E. Ralston, *Geochim. Cosmochim. Acta* **38** (1974) 1625
- [DR87] P. Dragovitsch, Thesis, Universität zu Köln (1987)
- [DU91] V.E. Dudkin, in N.P. Kocherov (ed.): *Intermediate Energy Nuclear Data for Applications*, INDC(NDS)-245, IAEA Wien (1991) 37
- [ED76] J.A. Eddy, *Science* **192** (1976) 1189
- [EU88] O. Eugster, *Geochim. Cosmochim. Acta* **52** (1988) 1649
- [EU95] O. Eugster, Th. Michel, *Geochim. Cosmochim. Acta* **59** (1995) 177
- [EV82] J.C. Evans, J.H. Reeves, L.A. Rancitelli, D.D. Bogard, *J. Geophys. Res.* **87** (1982) 5577
- [FA63] U. Fano, *Ann. Rev. Nucl. Sci.* **13** (1963) 1
- [FE49] E. Fermi, *Phys. Rev.* **75** (1949) 1169
- [FI92] D. Filges, Habilitationsschrift, Report Jül-2609 (1992)
- [FI93] R.C. Finkel, M. Suter, *Advances in Analytical Geochemistry* **1** (1993) 1
- [FI96] R.B. Firestone, V.S. Shirley, Eds., in: *Table of Isotopes*, 8<sup>th</sup> Ed., Wiley, New York, (1996)
- [FR63] P.S. Freier, W.R. Webber, *J. Geophys. Res.* **68** (1963) 1605
- [GA75] M. Garcia-Munoz, G.M. Mason, J.A. Simpson, *Astrophys. J.* **202** (1975) 265
- [GA96A] D.H. Garrison, D.D. Bogard, M.N. Rao, R.C. Reedy, LPS XXVII (1996) 395
- [GA96B] D.H. Garrison, private communication (1996)
- [GE79] R. Gensho, O. Nitoh, T. Makino, M. Honda, *Phys. Chem. Earth* **11** (1979) 11
- [GI92] E. Gilibert, B. Lavielle, G.N. Simonoff, R. Rösel, U. Herpers, M. Schnatz-Büttgen, M. Lüpke, R. Michel, *Meteoritics* **27** (1992) 223
- [GI93] E. Gilibert, B. Lavielle, G.N. Simonoff, R. Rösel, U. Herpers, M. Schnatz-Büttgen, M. Lüpke, R. Michel, *Meteoritics* **28** (1993) 352
- [GI94] E. Gilibert, B. Lavielle, G.N. Simonoff, R. Rösel, U. Herpers, S. Neumann, M. Lüpke, R. Michel,

- Meteoritics **29** (1994) 468
- [GI97A] E. Gilibert, B. Lavielle, Th. Schiekel, U. Herpers, S. Neumann, I. Leya, R. Michel, MAPS **32** (1997) A47
- [GI97B] E. Gilbert, private communication (1997)
- [GI98] E. Gilibert, B. Lavielle, S. Neumann, M. Gloris, R. Michel, Th. Schiekel, U. Herpers, NIMB (1998) in press
- [GL67] W. Gleissberg, Solar Physics **2** (1967) 231
- [GL93] M. Gloris, Diplomarbeit, Universität Hannover (1993)
- [GL98A] M. Gloris, Thesis, Universität Hannover (1998)
- [GL98B] M. Gloris, private communication (1998)
- [GL98C] M. Gloris, private communication (1998)
- [GO88] J.N. Goswami, R.E. McGuire, R.C. Reedy, D. Lal, R. Jha, J. Geophys. Res. **A93** (1988) 7195
- [GÖ98] J. Görres et al., Phys. Rev. Lett. **80** (1998) 2554
- [GR85] P.W. Gray, A. Ahmad, NIMPR **A237** (1985) 577
- [GR88] T. Graf, Thesis, ETH-Zürich (1988)
- [GR90A] Th. Graf, P. Signer, R. Wieler, U. Herpers, R. Sarafin, S. Vogt, Ch. Fieni, P. Pellas, G. Bonani, M. Suter, W. Wölfli, Geochim. Cosmochim. Acta **54** (1990) 2511
- [GR90B] Th. Graf, H. Baur, P. Signer, Geochim. Cosmochim. Acta **54** (1990) 2521
- [HA95] S. Haase, Diplomarbeit, Universität Hannover (1995)
- [HE83] R.G. Helmer, Int. J. Appl. Radiat. Isot. **34** (1983) 1105
- [HE85] G. Heusser, Z. Ouyang, T. Kirsten, U. Herpers, P. Englert, EPSL **72** (1985) 263
- [HE87] R. Helmer, Can. J. Phys. **65** (1987) 588
- [HE91] G. Heiken, D. Vaniman, B.M. French (eds.), Lunar Sourcebook (1991), Cambridge University Press, Cambridge, 279
- [HE93] B. Heber, A. Raviart, C. Paizis, M. Bialk, W. Dröge, R. Ducros, P. Ferrando, H. Kunow, R. Müller-Mellin, C. Rastoin, K. Röhrs, G. Wibberenz, Proc. XXIII Int. Cosmic Ray Conf., Calgary **2** (1993) 461
- [HE96] G. Heusser, Z. Ouyang, J. Oehm, W. Yi, MAPS **31** (1996) 657
- [HE97] G.F. Herzog, K. Aggrey, K. Metzler, A.R. Hildebrand, M. Bouchard, A.J.T. Jull, H.R. Andrews, M.-S. Wang, T. Ferko, M.T. Lipschutz, J.F. Wacker, R. Wieler, MAPS **32** (1996) A59
- [HO57] R. Hofstadter, Ann. Rev. Nucl. Sci. **7** (1957) 231
- [HO64] M. Honda, D. Lal, Nucl. Phys. **51** (1964) 363
- [HO78] C.M. Hohenberg, K. Marti, F.A. Podosek, R.C. Reedy, J.R. Shirck, Proc. LPSC 9th (1978) 2311
- [HO95] A. Howering, Diplomarbeit, Universität Hannover (1995)
- [HS70] K.C. Hsieh, J.A. Simpson, J. Astrophys. **162** (1970) L191
- [HU95] J.H. Hubbel, S.M. Seltzer, U.S. Department of Commerce, National Institute of Standards and Technology, Physics Laboratory, Ionizing Radiation Division, Gaithersburg, MD 20899, NISTIR 5632 (1995)
- [IM73] M. Imamura, R.C. Finkel, M. Wahlen, EPSL **20** (1973) 107
- [IR97] IRPS Bulletin, **10** (1997) 2
- [JA82] J.F. Janni, At. Data Nucl. Tabl. **27** (1982) 147
- [JA90] E. Jarosewich, Meteoritics **25** (1990) 323
- [JE70] I.L. Jenkins, A.G. Wain, J. Inorg. Nucl. Chem. **32** (1970) 1419
- [JE94] P. Jenniskens, H. Betlem, J. Betlem, E. Barifaijo, T. Schlüter, H. Hampton, M. Laubenstein, J. Kunz, G. Heusser, Meteoritics **29** (1994) 246
- [JI85] Jilin Consortium Study I, EPSL **72** (1985) 246
- [JI96] Jilin Consortium Study II, MAPS **31** (1996) 657
- [JO77] Joint Investigation Group of the Kirin Meteorite Shower, Academica Sinica, Scientia Sinica **20** (1977) 502
- [JO95] K.P. Jochum, private communication to R. Michel (1995)
- [JU70] J.A. Jungerman, F.P. Brady, NIM **89** (1970) 167
- [JU71] J.A. Jungerman, F.P. Brady, W.J. Knox, T. Montgomery, M.R. McGie, J.L. Romero, Y. Ishizaki, NIM **94** (1971) 421
- [JU92] A.J.T. Jull, D.J. Donahue, R.C. Reedy, LPSC XXIII (1992) 639
- [KA94] C. Kaftan, Diplomarbeit, Universität Hannover (1994)
- [KI96] R.R. Kinsey et al., The NUDAT/PCNUDAT Program for Nuclear Data, subm. To the 9<sup>th</sup> Int. Symp. of Capture Gamma-Ray Spectr. and Related Topics, Budapest, Hungary, Oct. 1996. Data extracted

- from the NUDAT database version 2.22 (31. Jan. 1996)
- [KI97] E. Kim, T. Nakamura, Y. Uwamino, M. Imamura, N. Nakao, Su. Tanaka, in: G. Reffo, A. Ventura, C. Grandi (eds.), Proc. Int. Conf. Nucl. Data for Science and Technology, Trieste, 19-24 May 1997, IPS Conf. Proc. 59 Bologna (1997) 1503
- [KN97] F. Knappe, DSG Detector Systems, private communication (1997)
- [KO78] C.P. Kohl, M.T. Murrel, G.P. Russ III, J.R. Arnold, Proc. LPSC 9th (1978) 2299
- [KO89] K.-M. Koch, Thesis, IKP/KFA-Jülich, Report Jül-2296 (1989)
- [KR95] A. Krins, Diplomarbeit, Universität Hannover (1995)
- [KU75] A.P. Kushelevsky, Z.B. Alfassi, NIM **131** (1975) 93
- [LA63] A.K. Lavrukhina, L.P. Moskaleva, V.V. Malyshev, L.M. Satarova, Sov. Phys. JETP. **16** (1963) 1
- [LA72] D. Lal, Space Sci. Rev. **14** (1972) 3
- [LA73] L.J. Lanzerotti, High Energy Phenomena on the Sun Symposium Proceedings, R. Ramaty and R.G. Stone (eds.), NASA Goddard X-693-73-193, 427
- [LA87] B. Lavielle, K. Marti, Proc. LPSC 18th (1987) 565
- [LA88] D. Lal, Ann. Rev. Earth Planet. Sci. **16** (1988) 355
- [LA94] H.-J. Lange, Thesis, Universität Hannover (1994)
- [LA97] B. Lavielle, S. Toe, E. Gilibert, MAPS **32** (1997) 97
- [LE83] J.R. Letaw, R. Silberberg, C.H. Tsao, Astrophys. J. Suppl. Ser. **51** (1983) 271
- [LE91] V.N. Levkovski, Cross Sections of medium Mass Nuclide Activation (A=40-100) by medium Energy Protons and  $\alpha$ -Particles (E=10-50 MeV), Selbstverlag, Moskau (1991)
- [LI68] H. Liskien, Nucl. Phys. **A118** (1968) 379
- [LO93] J.A. Lockwood, W.R. Webber, Proc. XXIII Int. Cosmic Ray Conf., Calgary **2** (1993) 469
- [LU93] M. Lüpke, Thesis, Universität Hannover (1993)
- [LY93] I. Leya, Diplomarbeit, Universität Hannover (1993)
- [LY96] I. Leya, Thesis, Universität Hannover (1996)
- [LY98A] I. Leya, H. Busemann, H. Baur, R. Wieler, M. Gloris, S. Neumann, R. Michel, F. Sudbrock, U. Herpers, NIMPR **B145** (1998) 449
- [LY98B] I. Leya, R. Michel, H.-J. Lange, S. Neumann, R. Wieler, MAPS (1998) to be submitted
- [MA67] K. Marti, Phys. Rev. Lett. **18** (1967) 264
- [MA69] P. Marmier, E. Sheldon, Physics of Nuclei and Particles, Academic Press, New York and London (1969)
- [MA71] K. Marti, G.W. Lugmair, Proc. Second Sci. Conf. **2** (1971) 1591
- [MA79] B. Mason, Data of Geochemistry 6<sup>th</sup> Edition, Chapter B. Cosmochemistry, Part 1. Meteorites, US Geological Survey Professional Paper 440-B-1 (1979)
- [MA81] K.Marti in: L.A. Curie, Nuclear and chemical dating techniques ACS, Washington DC, ACS Conf. Proc. **176** (1981) 129
- [MA96] J. Masarik, R.C. Reedy, MAPS **31** (1996) A84
- [ME97] S. Merchel, U. Herpers, S. Neumann, R. Michel, P.W. Kubik, M. Suter, D. Faestermann, K. Knie, G. Korschinek, T. Schätz, N. Bhandari, MAPS **32** (1997) A90
- [ME98] S. Merchel, Thesis, Universität zu Köln (1998)
- [MI79] R. Michel, G. Brinkmann, H. Weigel, W. Herr, Nucl. Phys. **A322** (1979) 40
- [MI80] R. Michel, G. Brinkmann, J. Radioanal. Chem. **59** (1980) 467
- [MI84] R. Michel, R. Stueck, J. Geophys. Res. **B89** (1984) 673
- [MI89] R. Michel, B. Dittrich, U. Herpers, F. Peiffer, T. Schiffmann, P. Cloth, P. Dragovitsch, D. Filges, Proc. 2nd Int. Conf. Nucl. Radiochem., July 1988, Brighton, Analyst **114** (1989) 295
- [MI91] R. Michel, P. Dragovitsch, P. Cloth, G. Dagege, D. Filges, Meteoritics **26** (1991) 221
- [MI96A] R. Michel, I. Leya, R. Borges, NIMPR **B113** (1996) 434
- [MI96B] R. Michel, R. Bodemann, H. Busemann, R. Daunke, M. Gloris, H.-J. Lange, B. Klug, A. Krins, I. Leya, M. Lüpke, S. Neumann, H. Reinhardt, M. Schnatz-Büttgen, U. Herpers, Th. Schiekkel, F. Sudbrock, B. Holmqvist, H. Condé, P. Malmborg, M. Suter, B. Dittrich-Hannen, P.-W. Kubik, H.-A. Synal, D. Filges, NIM **B129** (1997) 153
- [MI97] R. Michel, P. Nagel, NSC/DOC(97)-1 NEA/OECD, Paris, 1997
- [MK82] R.B. McKibben, K.R. Pyle, J.A. Simpson, Astrophys. J. **254** (1982) L23
- [MK87] R.B. McKibben, Rev. Geophys. **25** (1987) 711
- [NA92] T. Nakamura, H. Sugita, M. Imamura, Y. Uwamino, S. Shibata, H. Nagai, M. Takabatake, K. Kobayashi, in: S.M. Qaim (ed.): Proc. Int. Conf. Nucl. Data for Science and Technology, Springer Verlag, Berlin (1992) 714

- [NA97] T. Nakamura, M. Takada, N. Nakao, M. Baba, T. Iwasaki, H. Nakashima, Sh. Tanaka, S. Meigo, Y. Sakamoto, Y. Nakane, Su. Tanaka, Y. Uwamino, N. Nakanishi in: G. Reffo, A. Ventura, C. Grandi (eds.), Proc. Int. Conf. Nucl. Data for Science and Technology, Trieste, 19-24 May 1997, IPS Conf. Proc. 59 Bologna (1997) 1508
- [NA98] N. Nakao, private communication (1998)
- [NE94] S. Neumann, Diplomarbeit, Universität Hannover (1994)
- [NE96] U. Neupert, Thesis, Universität Hannover (1996)
- [NE97A] S. Neumann, ZSR-interner Umdruck (1997)
- [NE97B] U. Neupert, R. Michel, I. Leya, S. Neumann, L. Schultz, P. Scherer, G. Bonani, I. Hajdas, S. Ivy-Ochs, P.W. Kubik, M. Suter, MAPS **32** (1997) A98
- [NI80] K. Nishiizumi, S. Regnier, K. Marti, EPSL **50** (1980) 156
- [NI84A] K. Nishiizumi, J. Klein, R. Middleton, J.R. Arnold, EPSL **70** (1984) 164
- [NI84B] K. Nishiizumi, D. Elmore, X.Z. Ma, J.R. Arnold, EPSL **70** (1984) 157
- [NI88] K. Nishiizumi, M. Imamura, C.P. Kohl, H. Nagai, K. Kobayashi, K. Yoshida, H. Yamashita, R.C. Reedy, M. Honda, J.R. Arnold, LPSC XVIII (1988) 79
- [NI95A] K. Nishiizumi, C.P. Kohl, J.R. Arnold, R.C. Finkel, M.W. Caffee, J. Masarik, R.C. Reedy, LPS XXVI (1995) 1055
- [NI95B] K. Nishiizumi, R.C. Finkel, M.W. Caffee, R.C. Reedy, LPS XXVI (1995) 1053
- [OB91] K. O'Brien, A. de la Zerda Lerner, M.A. Shea, D.F. Smart, in: C.P. Sonett, M.S. Giampapa, M.S. Matthews (eds.), The Sun in Time (1991), The University of Arizona, Tucson, 317
- [OH65] G.G. Ohlsen, NIM **37** (1965) 240
- [OH90] S. Ohnimus, Diplomarbeit, Universität Hannover (1990)
- [PE77] F.G. Perey, ORNL/TM-6062, ENDF-254, NEA Data Bank, Gif-sur-Yvette Cedex (Frankreich), (1977)
- [PE89] S. Pearlstein, Astrophys. J. **246** (1989) 1049
- [PF95] G. Pfennig, H. Klewe-Nebenius, W. Seelmann-Eggebert, Karlsruher Nuklidkarte, 8. Auflage (1995)
- [PI94] B. Pistorius, G. Heusser, Meteoritics **29** (1994) 519
- [PO76] C.H. Poppe, J.D. Anderson, J.C. Davis, S.M. Grimes, C. Wong, Phys. Rev. **C14** (1976) 438
- [PO79] M.B. Potdar, N. Bhandari, Proc. Ind. National Sci. Acad. **45A** (1979) 32
- [PO87] D. Počanić, K. Wang, C.J. Martoff, S.S. Hanna, R.C. Byrd, C.C. Foster, D.L. Friesel, J. Rapaport, Can. J. Phys. **65** (1987) 687
- [PR93] R.E. Prael, Proc. Workshop on Simulating Accelerator Environments, January 11-15, 1993, Santa Fe, New Mexico, USA, LA-12835-C (1993) 204
- [PR97A] J. Protopschill, Diplomarbeit, Universität Hannover (1997)
- [PR97B] A. Prokofiev, private communication (1997)
- [PR98] A. Prokofiev, private communication (1998)
- [RA77] G.M. Raisbeck, F. Yiou, 15th Int. Cosmic Ray Conf., Plovdiv **2** (1977) 112
- [RA79] G.M. Raisbeck, J. Leztringez, S. Salaün, A. Vliet, D. Bourles, F. Yiou, 16th Int. Cosmic Ray Conf., Kyoto **2** (1979) 207
- [RA93] M.N. Rao, D.H. Garrison, D.D. Bogard, R.C. Reedy, J. Geophys. Res. **98** (1993) 7827
- [RA94] M.N. Rao, D.H. Garrison, D.D. Bogard, R.C. Reedy, Geochim. Cosmochim. Acta **58** (1994) 4231
- [RE63] L.P. Remsberg, J.M. Miller, Phys. Rev. **130** (1963) 2069
- [RE68] J.B.J. Read, J. Inorg. Nucl. Chem. **30** (1968) 2039
- [RE72A] R.C. Reedy, J.R. Arnold, J. Geophys. Res. **77** (1972) 537
- [RE72B] G.W. Reed, Jr., S. Jovanovic, L. Fuchs, Proc. LPSC 3th (1972) 1989
- [RE77] R.C. Reedy, Proc. Lunar Sci. Conf. **8** (1977) 825
- [RE82] S. Regnier, B. Lavielle, M. Simonoff, G.N. Simonoff, Phys. Rev. **C26** (1982) 931
- [RE83] U. Reus, W. Westmeier, At. Data Nucl. Tabl. **29** (1983)
- [RE91] R.C. Reedy, K. Marti, in: C.P. Sonett, M.S. Giampapa, M.S. Matthews (eds.), The Sun in Time (1991), The University of Arizona, Tucson, 260
- [RE95] R.C. Reedy, J. Masarik, LPSC XXVI (1995) 1153
- [RE98] R.C. Reedy, LPS XXIX, Lunar and Planetary Institute, Houston (CD-ROM) (1998) Abstract #1701
- [RM94] M. Rehmann, Diplomarbeit, Universität Hannover (1994)
- [SC77] S.D. Schery, L.E. Young, R.R. Doering, Sam M. Austin, R.K. Bhowmik, NIM **147** (1977) 399
- [SC88] Th. Schiffmann, Diplomarbeit, Universität zu Köln (1988)
- [SC92A] U.J. Schrewe, H.J. Brede, M. Matzke, R. Nolte, J.P. Meulders, H. Schuhmacher, I. Slypen, in: S.M. Qaim (ed.): Proc. Int. Conf. Nucl. Data for Science and Technology, Springer Verlag, Berlin (1992)

669

- [SC92B] H. Schuhmacher, W.G. Alberts, Rad. Prot. Dos. **42** (1992) 287
- [SC93] U. Schötzig, H.Schrader, PTB-Bericht PTB-Ra-16/4, Braunschweig 1993
- [SC95] Th. Schiekel, Thesis, Universität zu Köln (1995)
- [SC97] H. Schuhmacher, H.J. Brede, V. Dangendorf, M. Kuhfuss, J.P. Meulders, W.D. Newhauser, R. Nolte, U.J. Schrewe, in: G. Reffo, A. Ventura, C. Grandi (eds.), Proc. Int. Conf. Nucl. Data for Science and Technology, Trieste, 19-24 May 1997, IPS Conf. Proc. 59 Bologna (1997) 388
- [SC98A] H. Schuhmacher, private communication (1998)
- [SC98B] U. Schrewe, private communication (1998)
- [SE47] R. Serber, Phys. Rev. **72** (1947) 1114
- [SE81] W. Seelmann-Eggebert, G. Pfennig, H. Münzel, H. Klewe-Nebenius, Karlsruher Nuklidkarte (1981)
- [SH95A] Yu. N. Shubin, V.P. Lunev, A. Yu. Konobeyev, A.I. Dityuk, IAEA INDC(CCP)-385, Vienna, Austria, 1995
- [SH95B] S. Shibata, T. Shibata, M. Imamura, T. Ohkubo, S. Satoh, Y. Uwamino, N. Morikawa, N. Nogawa, INS-Rep.-1115 (1995)
- [SI83] J.A. Simpson, Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. **33** (1983) 323
- [SI92] J.A. Simpson et al., Astron. Astrophys. Suppl. Ser. **92** (1992) 365
- [ST70] E. Storm, H.I. Israel, Nucl. Data Tabl. **A7** (1970) 565
- [ST80] P.A. Sturrock, (ed.): Solar Flares, Colorado Ass. Univ. Press (1980), Boulder/Colorado
- [ST90] G.F. Steyn, S.J. Mills, F.M. Nortier, B.R.S. Simpson, B.R. Meyer, Appl. Radiat. Isot. **41** (1990) 315
- [SU71] K. Suga, H. Sakuyama, S. Kawaguchi, T. Hara, Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 1604 + erratum ibid. **28** (1972) 260
- [SU94] S. Sudar, S.M. Qaim, Phys. Rev. **C50** (1994) 2408
- [SU95] K.M. Suthar, C.J. Clement, S.V.S. Murty, N. Bhandari, LPSC XXVI (1995) 1379
- [SU97] F. Sudbrock, Thesis, Universität zu Köln (1997)
- [TA96] M. Takada, T. Nakamura, M. Baba, T. Iwasaki, T. Kiyosumi, NIM **A372** (1996) 253
- [TO81] J. Tobailém, CEA-N-1466(5) (1981) 103
- [TU87] J.K. Tuli, BNL-NCS-51655 - Rev. 87 UC-34c (1987)
- [UR72] I.H. Urch, L.J. Gleeson, Astron. Space Sci. **17** (1972) 426
- [UW88] Y. Uwamino, T. Ohkubo, A. Torii, T. Nakamura, NIM **A271** (1988) 546
- [UW97] Y. Uwamino, T.S. Soewarsono, H. Sugita, Y. Uno, T. Nakamura, T. Shibata, M. Imamura, S. Shibata, NIM **A389** (1997) 463
- [VO88] S. Vogt, Thesis, Universität zu Köln (1988)
- [WA73A] M. Wahlen, R.C. Finkel, M. Imamura, C.P. Kohl, J.R. Arnold, EPSL **19** (1973) 315
- [WA73B] R. Walker, D. Yuhas, Proc. Lunar Sci. Conf. **4** (1973) 2379
- [WA74A] J.T. Wasson, Meteorites, Springer Verlag, Berlin (1974)
- [WA74B] H. Wänke, H. Palme, H. Baddenhauser, G. Dreibus, E. Jagoutz, H. Kruse, B. Spettel, F. Teschke, R. Thacker, Proc. Lunar Sci. Conf. **5** (1974) 1307
- [WA82] T.E. Ward, C.C. Foster, G.E. Walker, J. Rapaport, C.A. Goulding, Phys. Rev. **C25** (1982) 762
- [WE83] W.R. Webber, D.A. Brautigam, J.C. Kish, D. Schrier, 18th Int. Cosmic Ray Conf., Bangalore **2** (1983) 198
- [WE95] W. Westmeier, GAMMA-W 17.02 Manual, Ebsdorfergrund-Mölln, November 1995
- [WI66] C.F. Williamson, J.-P. Boukot, J. Picard, CEA-R 3042 (1966)
- [ZI85] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, U. Littmark, The Stopping and Range of Ions in Solids, Vol. I, Pergamon Press, New York, (1985)
- [ZI97] V. Ziemann, private communication (1997)
- [ZI98] V. Ziemann, private communication (1998)

## Anhang A - In dieser Arbeit ausgewertete Targets (Protonen)

In diesem Anhang sind die ausgewerteten Targets der Protonenbestrahlungen aufgeführt; angegeben sind die Probenbezeichnung (in leicht gegenüber Kapitel 4.2.1 abgewandelter Notation; siehe [GL98A]), die Probenmasse  $m$ , die Protonenenergie  $E_p$ , die Protonendosis, die Flußdichte  $\phi$  (sofern in dieser Arbeit bestimmt), die ausgewerteten Nuklide sowie die Referenz für die Flußdichtebestimmung.

Für Energien  $E_p$  unterhalb von 200 MeV ist angegeben, ob die Monitorwirkungsquerschnitte der Reaktion  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$  der Arbeit von Tobaillem [TO81] oder der von Steyn et al. [ST90] entnommen wurden. Die in dieser Arbeit bestimmten Flußdichten wurden nur aus den Messungen der Aluminiumfolien vor den jeweiligen Targets ausgewertet. Eine Einordnung der Werte in den Flußdichteverlauf des Stacks sollte erfolgen, sobald eine vollständige Flußdichteauswertung für diese Experimente (UPPSOS, SACLOR/OP) vorliegt. Die Unsicherheiten der Protonenenergien  $E_p$  sind Anhang B zu entnehmen. Die Unsicherheiten der Dosis und der Flußdichte sind nicht aufgeführt; sie sind im allgemeinen kleiner als 2 %, wenn die Meßstatistik und die Mittelung nach Gleichung (4.13) berücksichtigt wird.

### A.1 - Titan

Tabelle A.1 Ausgewertete Ti-Targets.

Probe	$m$ [mg]	$E_p$ [MeV]	Dosis [ $10^{14}\text{cm}^{-2}$ ]	$\phi$ [ $10^{10}\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ]	Nuklide	Monitor
TIUH542	78.05	83.4	11.5	-	alle	PR97A, ST90
TIUH352	78.23	103.	12.0	-	alle	PR97A, ST90
TIUH282	78.24	110.	12.1	-	alle	PR97A, ST90
TIUH152	77.62	124.	12.4	-	alle	PR97A, ST90
TIUH062	78.06	133.	12.6	-	alle	PR97A, ST90
TIUL442	101.45	131.	19.3	-	alle	PR97A, ST90
TIUL441	101.57	131.	19.3	-	alle	PR97A, ST90
TIUL402	99.11	136.	19.5	-	alle	PR97A, ST90
TIUL362	99.15	141.	19.7	-	alle	PR97A, ST90
TIUL322	99.87	146.	19.9	-	alle	PR97A, ST90
TIUL282	100.04	151.	20.1	-	alle	PR97A, ST90
TIUL242	99.80	156.	20.3	-	alle	PR97A, ST90
TIUL202	101.67	161.	20.4	-	alle	PR97A, ST90
TIUL162	99.80	165.	20.6	-	alle	PR97A, ST90
TIUL072	100.91	172.	20.9	-	alle	PR97A, ST90
TIUS332	220.97	43.3	16.1	11.2	alle	diese Arbeit, ST90
TIUS292	216.55	52.0	17.1	11.9	alle	diese Arbeit, ST90
TIUS252	213.47	58.4	17.3	12.0	alle	diese Arbeit, ST90
TIUS202	219.87	66.9	18.6	12.9	alle	diese Arbeit, ST90
TIUS162	216.99	73.2	18.2	12.7	alle	diese Arbeit, ST90
TISN083	111.25	953.	1.50	-	alle	BU97
TISM083	112.12	1355.	1.97	-	alle	BU97
TISR083	112.27	2600.	7.25	1.09	alle	diese Arbeit
TIPY101	109.22	28.0	76.9	-	$^{44}\text{Ti}$	LY93, TO81
TIPY081	109.39	32.5	76.9	-	$^{44}\text{Ti}$	LY93, TO81
TIPY043	110.42	39.1	76.9	-	$^{44}\text{Ti}$	LY93, TO81
TIPY021	109.48	43.8	76.9	-	$^{44}\text{Ti}$	LY93, TO81
TISH063	109.69	306.	12.1	-	$^{44}\text{Ti}$	HO95
TISG063	109.19	380.	21.2	-	$^{44}\text{Ti}$	HO95
TISF063	239.13	586.	9.23	-	$^{44}\text{Ti}$	HA95
TISE063	242.83	787.	28.7	-	$^{44}\text{Ti}$	HA95

## A.2 - Eisen

Tabelle A.2 Ausgewertete Fe-Targets.

Probe	m [mg]	$E_p$ [MeV]	Dosis [ $10^{14}$ cm $^{-2}$ ]	$\varphi$ [ $10^{10}$ cm $^{-2}$ s $^{-1}$ ]	Nuklide	Monitor
FESP052	191.47	278.	26.6	4.77	alle	diese Arbeit
FESN112	190.52	959.	2.03	-	alle	BU97
FESM112	191.03	1361.	2.78	-	alle	BU97
FESR092	191.56	2600.	7.21	1.09	alle	diese Arbeit
FEPX151	74.42	16.8	63.6	-	$^{55}\text{Fe}$	LY93, TO81
FEPX133	81.75	21.2	63.6	-	$^{55}\text{Fe}$	LY93, TO81
FEPX131	81.65	22.6	63.6	-	$^{55}\text{Fe}$	LY93, TO81
FEPX113	78.00	26.3	63.6	-	$^{55}\text{Fe}$	LY93, TO81
FEPX111	81.38	27.4	63.6	-	$^{55}\text{Fe}$	LY93, TO81
FEPX091	74.76	31.5	63.6	-	$^{55}\text{Fe}$	LY93, TO81
FEPX072	80.67	34.9	63.6	-	$^{55}\text{Fe}$	LY93, TO81
FEPX051	77.75	38.8	63.6	-	$^{55}\text{Fe}$	LY93, TO81
FEPX031	83.33	42.1	63.6	-	$^{55}\text{Fe}$	LY93, TO81
FEU3491	228.22	26.2	21.6	-	$^{55}\text{Fe}$	BO93, TO81
FEU3392	189.60	45.9	22.0	-	$^{55}\text{Fe}$	BO93, TO81
FEU3282	224.25	64.5	22.5	-	$^{55}\text{Fe}$	BO93, TO81
FEU3172	211.12	79.8	23.1	-	$^{55}\text{Fe}$	BO93, TO81
FEU3062	228.74	93.3	23.7	-	$^{55}\text{Fe}$	BO93, TO81
FEU9342	191.58	114.	21.2	-	$^{55}\text{Fe}$	RM94, ST90
FES5SRM	191.32	299.	9.35	-	$^{44}\text{Ti}$ , $^{55}\text{Fe}$	GL93
FESSRM2	191.00	399.	12.1	-	$^{44}\text{Ti}$ , $^{55}\text{Fe}$	GL93
FESD003	165.91	1200.	34.2	-	$^{44}\text{Ti}$ , $^{55}\text{Fe}$	GL98A
FESC001	77.27	1600.	44.4	-	$^{44}\text{Ti}$	GL98A

## A.3 - Nickel

Tabelle A.3 Ausgewertete Ni-Targets.

Probe	m [mg]	$E_p$ [MeV]	Dosis [ $10^{14}$ cm $^{-2}$ ]	$\varphi$ [ $10^{10}$ cm $^{-2}$ s $^{-1}$ ]	Nuklide	Monitor
NISN001	412.19	957.	1.81	-	alle	BU97
NISM001	414.65	1359.	2.59	-	alle	BU97
NISR103	194.82	2600.	8.22	1.24	alle	diese Arbeit
NISH093	208.39	299.	8.88	-	$^{44}\text{Ti}$	HO95
NISG093	208.52	373.	16.4	-	$^{44}\text{Ti}$	HO95
NISE093	424.03	781.	20.6	-	$^{44}\text{Ti}$	HA95
NISC065	203.81	1590.	37.5	-	$^{44}\text{Ti}$	GL98A
NISD063	440.35	1200.	28.4	-	$^{44}\text{Ti}$	GL98A

## Anhang B - Wirkungsquerschnitte für die Protonen-Induzierte Restkernproduktion

### Vorbemerkungen

In den folgenden Anhängen B.1 bis B.3 sind alle in dieser Arbeit für die Targetelemente Titan, Eisen und Nickel bestimmten Wirkungsquerschnitte tabelliert. Nicht aufgeführt sind die Energien und Entkommwahrscheinlichkeiten der zur Bestimmung herangezogenen  $\gamma$ -Linien sowie die Halbwertszeiten der Restkerne, die bis auf wenige Ausnahmen aus dem Katalog von Reus und Westmeier [RE83] entnommen wurden. Der ganze Datensatz liegt jedoch in Form einer Datei (NE98.SIG) vor, in der diese Informationen für jeden einzelnen Wirkungsquerschnitt enthalten ist.

Es wurden alle Wirkungsquerschnitte mit in die Tabellen aufgenommen, das heißt, auch die, bei denen davon ausgegangen werden muß, daß die Produktion dieser Nuklide durch sekundäre Teilchen überlagert wurde. Auch wurden solche Werte aufgenommen, bei denen sich durch die Berechnung der unabhängigen Daten Fehler des Wirkungsquerschnittes ergaben, die größer als dieser selbst sind; solche Wirkungsquerschnitte sind natürlich nur als Anhaltspunkte zu verstehen.

Jede einzelne Tabelle setzt sich wie folgt zusammen:

- Eine Reaktionszeile bestehend aus Targetelement, Projektil, Reaktionskanal und Produktnuklid; der Reaktionskanal ist als reine Nukleonenbilanz zu verstehen. Am rechten Ende der Reaktionszeile kennzeichnen die Kürzel 'ind' und 'cum', ob die Produktion des Restkerns unabhängig oder kumulativ gemessen wurde.
- Eine Überschriftenzeile.
- Jede weitere Zeile enthält einen Datensatz bestehend aus Protonenenergie  $E$  und deren Fehler  $\Delta E$  in MeV, den bei dieser Energie gemessenen Produktionswirkungsquerschnitt sowie seinen Fehler in mbarn und gegebenenfalls in Klammern die Zahl der zur Berechnung des Wirkungsquerschnitts nach Gleichung (4.13) herangezogenen Aktivitäten; letztere können aus verschiedenen  $\gamma$ -Linien stammen. Sind keine Klammern aufgeführt, so handelt es sich um einen unabhängigen Wirkungsquerschnitt, der durch die Korrektur auf den Zerfall hin eines ebenfalls gemessenen Progenitors berechnet wurde.
- Gegebenenfalls am unteren Ende der Tabelle eine oder mehrere Kommentarzeilen.

Die Tabellen sind dreispaltig angeordnet, wobei eine links unten unterbrochene Tabelle in der folgenden Spalte oben ohne Wiederholung der Reaktionszeile fortgesetzt wird.

### B.1 Wirkungsquerschnitte für die Produktion von $^{55}\text{Fe}$ aus Eisen

Fe-nat(p,pxn)Fe-55			cum	
$E \pm \Delta E$ [MeV]	$\sigma \pm \Delta\sigma$ [mb]			
16.8 ± 0.8	306	± 46	( 2)	
21.2 ± 0.7	468	± 70	( 2)	
22.6 ± 0.7	532	± 80	( 3)	
26.2 ± 1.7	263	± 39	( 4)	
26.3 ± 0.6	536	± 80	( 4)	
27.4 ± 0.6	485	± 72	( 3)	
31.5 ± 0.6	342	± 51	( 3)	
34.9 ± 0.5	228	± 34	( 3)	
38.8 ± 0.4	189	± 28	( 4)	
42.1 ± 0.4	186	± 28	( 3)	
45.9 ± 1.3	86.3	± 13.0	( 2)	
64.5 ± 1.1	62.0	± 9.3	( 2)	
79.8 ± 0.9	54.9	± 8.7	( 3)	
93.3 ± 0.7	47.0	± 7.0	( 1)	
114 ± 2	40.5	± 5.1	( 1)	
299 ± 1	46.1	± 6.9	( 3)	
399 ± 1	40.3	± 6.0	( 2)	
1200 ± 1	37.3	± 5.5	( 1)	



953	± 2	35.2	± 4.4	( 23)
1355	± 2	33.3	± 4.2	( 25)
2600	± 1	24.6	± 3.0	( 16)

Ti-nat(p,2pxn)Sc-47					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
43.3 ± 1.4	21.1	± 2.0	( 5)		
58.4 ± 1.2	21.4	± 2.1	( 6)		

Ti-nat(p,2pxn)Sc-47					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
52.0 ± 1.3	20.1	± 1.9	( 5)		
66.9 ± 1.1	19.2	± 1.8	( 6)		
73.2 ± 1.0	19.9	± 1.9	( 7)		
83.4 ± 1.4	22.3	± 2.1	( 8)		
103 ± 1	23.1	± 2.2	( 9)		
110 ± 1	22.7	± 2.2	( 10)		
124 ± 1	22.9	± 2.2	( 11)		
131 ± 1	21.6	± 2.0	( 12)		
133 ± 1	22.2	± 2.1	( 13)		
136 ± 1	21.4	± 2.0	( 14)		
141 ± 1	21.6	± 2.0	( 15)		
146 ± 1	21.8	± 2.0	( 16)		
151 ± 1	21.8	± 2.0	( 17)		
156 ± 1	21.4	± 2.0	( 18)		
161 ± 1	21.9	± 2.0	( 19)		
165 ± 1	22.0	± 2.1	( 20)		
172 ± 1	21.5	± 2.0	( 21)		
953 ± 2	34.4	± 4.2	( 22)		
1350 ± 2	33.1	± 4.2	( 23)		
2600 ± 1	24.3	± 3.0	( 24)		

Ti-nat(p,2pxn)Sc-48					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
43.3 ± 1.4	1.80	± 0.19	( 5)		
52.0 ± 1.3	1.91	± 0.18	( 3)		
58.4 ± 1.2	2.05	± 0.23	( 5)		
66.9 ± 1.1	1.90	± 0.19	( 3)		
73.2 ± 1.0	2.13	± 0.22	( 7)		
83.4 ± 1.4	2.40	± 0.23	( 6)		
103 ± 1	2.51	± 0.24	( 8)		
110 ± 1	2.42	± 0.23	( 7)		
124 ± 1	2.43	± 0.23	( 9)		
131 ± 1	2.34	± 0.22	( 6)		
133 ± 1	2.32	± 0.22	( 9)		
136 ± 1	2.31	± 0.22	( 6)		
141 ± 1	2.46	± 0.23	( 5)		
146 ± 1	2.48	± 0.24	( 8)		
151 ± 1	2.44	± 0.23	( 6)		
156 ± 1	2.37	± 0.22	( 7)		
161 ± 1	2.29	± 0.22	( 6)		
165 ± 1	2.32	± 0.22	( 6)		
172 ± 1	2.23	± 0.21	( 8)		
953 ± 2	3.63	± 0.46	( 12)		
1355 ± 2	3.62	± 0.47	( 10)		
2600 ± 1	2.78	± 0.35	( 9)		

Ti-nat(p,xn)v-48					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
43.3 ± 1.4	22.8	± 2.2	( 14)		
52.0 ± 1.3	15.6	± 1.5	( 9)		
58.4 ± 1.2	13.3	± 1.3	( 10)		
66.9 ± 1.1	10.4	± 1.0	( 14)		
73.2 ± 1.0	9.50	± 0.91	( 15)		
83.4 ± 1.4	9.00	± 0.87	( 6)		
103 ± 1	7.09	± 0.69	( 6)		
110 ± 1	6.76	± 0.65	( 11)		
124 ± 1	5.91	± 0.58	( 7)		
131 ± 1	5.17	± 0.50	( 6)		
133 ± 1	5.07	± 0.48	( 7)		
136 ± 1	5.05	± 0.48	( 5)		
141 ± 1	4.66	± 0.49	( 3)		
146 ± 1	4.61	± 0.44	( 7)		
151 ± 1	4.36	± 0.44	( 3)		
156 ± 1	4.25	± 0.40	( 6)		
161 ± 1	4.17	± 0.39	( 6)		
165 ± 1	4.00	± 0.39	( 6)		
172 ± 1	3.92	± 0.37	( 7)		
953 ± 2	1.72	± 0.22	( 8)		
1355 ± 2	1.64	± 0.22	( 6)		
2600 ± 1	1.38	± 0.17	( 11)		

Fe-nat(p,23pxn)Be-7					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	0.678	± 0.114	( 3)		
959 ± 2	4.49	± 0.62	( 5)		
1361 ± 2	6.76	± 0.88	( 7)		
2600 ± 1	9.44	± 1.20	( 6)		

Fe-nat(p,16pxn)Na-22					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	0.0457	± 0.0061	( 3)		
959 ± 2	1.21	± 0.17	( 3)		
1361 ± 2	2.18	± 0.29	( 6)		
2600 ± 1	2.81	± 0.35	( 5)		

Fe-nat(p,16pxn)Na-24					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
959 ± 2	1.88	± 0.24	( 4)		
1361 ± 2	3.02	± 0.38	( 4)		
2600 ± 1	3.82	± 0.49	( 2)		

Fe-nat(p,15pxn)Mg-28					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
959 ± 2	0.218	± 0.033	( 6)		
1361 ± 2	0.335	± 0.051	( 6)		
2600 ± 1	0.368	± 0.054	( 3)		

Fe-nat(p,8pxn)k-42					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
959 ± 2	5.33	± 0.72	( 4)		
1361 ± 2	5.03	± 0.76	( 4)		

Fe-nat(p,8pxn)k-43					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	0.436	± 0.067	( 5)		
959 ± 2	1.65	± 0.21	( 8)		
1361 ± 2	1.58	± 0.21	( 10)		
2600 ± 1	1.23	± 0.16	( 4)		

Fe-nat(p,7pxn)Ca-47					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
1361 ± 2	0.0547	± 0.0112	( 2)		

Fe-nat(p,6pxn)Sc-44m					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	5.11	± 0.64	( 5)		
959 ± 2	9.93	± 1.22	( 4)		
1361 ± 2	9.04	± 1.12	( 5)		
2600 ± 1	6.40	± 0.79	( 3)		

Fe-nat(p,6pxn)Sc-46m+g					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	6.28	± 0.77	( 21)		
959 ± 2	10.7	± 1.3	( 23)		
1361 ± 2	9.43	± 1.17	( 23)		
2600 ± 1	7.00	± 0.86	( 18)		

Fe-nat(p,6pxn)Sc-47					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	2.13	± 0.26	( 5)		
959 ± 2	3.80	± 0.47	( 7)		
2600 ± 1	2.67	± 0.33	( 3)		

Fe-nat(p,6pxn)Sc-47					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
1361 ± 2	3.40	± 0.42	( 5)		

Fe-nat(p,6pxn)Sc-48					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
959 ± 2	0.577	± 0.085	( 7)		
1361 ± 2	0.592	± 0.088	( 6)		
2600 ± 1	0.492	± 0.074	( 4)		

Fe-nat(p,4pxn)v-48					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	22.4	± 2.7	( 21)		
959 ± 2	22.1	± 2.8	( 19)		
1361 ± 2	19.1	± 2.4	( 25)		
2600 ± 1	14.0	± 1.7	( 18)		

Fe-nat(p,4pxn)v-48					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	21.3	± 2.6	( 21)		
959 ± 2	21.0	± 2.6	( 19)		
1361 ± 2	18.2	± 2.3	( 25)		
2600 ± 1	13.3	± 1.7	( 18)		

Fe-nat(p,3pxn)Cr-48					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	1.06	± 0.14	( 4)		
959 ± 2	1.00	± 0.13	( 6)		
1361 ± 2	0.807	± 0.102	( 6)		
2600 ± 1	0.628	± 0.082	( 4)		

Fe-nat(p,3pxn)Cr-51					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	53.1	± 6.5	( 7)		
959 ± 2	43.6	± 5.4	( 10)		
1361 ± 2	38.7	± 4.8	( 9)		
2600 ± 1	29.5	± 3.7	( 8)		

Fe-nat(p,2pxn)Mn-52m+g					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	15.8	± 2.0	( 31)		
959 ± 2	10.8	± 1.3	( 16)		
1361 ± 2	9.58	± 1.19	( 32)		
2600 ± 1	7.47	± 0.94	( 22)		

Fe-nat(p,2pxn)Mn-52m+g					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
2600 ± 1	7.01	± 1.03	( 22)		

Fe-nat(p,2pxn)Mn-54					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	41.2	± 5.0	( 10)		
959 ± 2	41.1	± 5.1	( 13)		
1361 ± 2	38.6	± 4.8	( 12)		
2600 ± 1	31.4	± 3.8	( 10)		

Fe-nat(p,pxn)Fe-52m+g					cum
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
2600 ± 1	0.428	± 0.079	( 2)		

Fe-nat(p,xn)Co-55					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
959 ± 2	0.401	± 0.063	( 7)		
1361 ± 2	0.350	± 0.059	( 4)		

Fe-nat(p,xn)Co-56					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	1.37	± 0.18	( 10)		
959 ± 2	1.03	± 0.14	( 14)		
1361 ± 2	1.14	± 0.15	( 11)		
2600 ± 1	0.894	± 0.117	( 7)		

Fe-nat(p,xn)Co-57					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
278 ± 1	0.143	± 0.018	( 5)		
959 ± 2	0.300	± 0.047	( 4)		
1361 ± 2	0.345	± 0.049	( 5)		
2600 ± 1	0.376	± 0.048	( 5)		

Fe-nat(p,xn)Co-58m+g					ind
E ± ΔE [MeV]		σ ± Δσ [mb]			
1361 ± 2	0.0785	± 0.0190	( 2)		
2600 ± 1	0.108	± 0.021	( 5)		

Ni-nat(p,25pxn)Be-7			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	5.54 ± 0.73	( 5)	
1359 ± 2	7.78 ± 1.00	( 3)	
2600 ± 1	10.7 ± 1.3	( 7)	

Ni-nat(p,18pxn)Na-22			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	1.26 ± 0.18	( 4)	
1359 ± 2	2.15 ± 0.27	( 4)	
2600 ± 1	3.01 ± 0.40	( 6)	

Ni-nat(p,18pxn)Na-24			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	1.18 ± 0.27	( 4)	
957 ± 2	1.17 ± 0.26	( 4)	
1359 ± 2	2.75 ± 0.41	( 6)	
2600 ± 1	2.88 ± 0.39	( 3)	

Ni-nat(p,17pxn)Mg-28			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	0.105 ± 0.020	( 5)	
1359 ± 2	0.157 ± 0.030	( 6)	
2600 ± 1	0.252 ± 0.044	( 6)	

Ni-nat(p,10pxn)k-42			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	2.87 ± 0.47	( 4)	
1359 ± 2	3.44 ± 0.61	( 3)	
2600 ± 1	2.32 ± 0.43	( 2)	

Ni-nat(p,10pxn)k-43			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	0.746 ± 0.100	( 6)	
1359 ± 2	0.753 ± 0.112	( 11)	
2600 ± 1	0.595 ± 0.077	( 3)	

Ni-nat(p,8pxn)Sc-44m			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	9.43 ± 1.18	( 8)	
1359 ± 2	8.64 ± 1.07	( 10)	
2600 ± 1	6.51 ± 0.82	( 6)	

Ni-nat(p,8pxn)Sc-46m+g			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	6.16 ± 0.77	( 16)	
1359 ± 2	5.59 ± 0.70	( 14)	
2600 ± 1	4.20 ± 0.52	( 15)	

Ni-nat(p,8pxn)Sc-47			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	1.59 ± 0.24	( 4)	
1359 ± 2	1.62 ± 0.24	( 6)	
2600 ± 1	1.13 ± 0.20	( 3)	

Ni-nat(p,8pxn)Sc-48			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
1359 ± 2	0.261 ± 0.063	( 3)	

Ni-nat(p,6pxn)v-48			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	24.2 ± 3.1	( 9)	
1359 ± 2	20.8 ± 2.6	( 12)	
2600 ± 1	15.3 ± 1.9	( 16)	

Ni-nat(p,6pxn)v-48			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	22.1 ± 2.8		
1359 ± 2	19.3 ± 2.4		
2600 ± 1	14.0 ± 1.7		

Ni-nat(p,5pxn)Cr-48			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	1.92 ± 0.24	( 8)	
1359 ± 2	1.43 ± 0.18	( 11)	
2600 ± 1	1.20 ± 0.15	( 5)	

Ni-nat(p,5pxn)Cr-51			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	39.9 ± 5.1	( 9)	
1359 ± 2	35.3 ± 4.5	( 10)	
2600 ± 1	26.2 ± 3.3	( 9)	

Ni-nat(p,4pxn)Mn-52m+g			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	15.7 ± 2.0	( 20)	
1359 ± 2	13.7 ± 1.7	( 25)	
2600 ± 1	10.8 ± 1.3	( 19)	

Ni-nat(p,4pxn)Mn-52m+g			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	14.1 ± 1.8		
2600 ± 1	9.40 ± 1.19		

Ni-nat(p,4pxn)Mn-54			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	16.3 ± 2.0	( 11)	
1359 ± 2	14.8 ± 1.8	( 8)	
2600 ± 1	12.0 ± 1.5	( 7)	

Ni-nat(p,3pxn)Fe-52m+g			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	1.53 ± 0.21	( 2)	
2600 ± 1	1.28 ± 0.21	( 3)	

Ni-nat(p,3pxn)Fe-59			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	0.369 ± 0.067	( 5)	
2600 ± 1	0.287 ± 0.043	( 5)	

Ni-nat(p,2pxn)Co-55			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	10.8 ± 1.4	( 11)	
1359 ± 2	9.51 ± 1.20	( 10)	
2600 ± 1	8.25 ± 1.05	( 11)	

Ni-nat(p,2pxn)Co-56			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	34.4 ± 4.3	( 15)	
1359 ± 2	31.1 ± 3.9	( 12)	
2600 ± 1	27.8 ± 3.4	( 11)	

Ni-nat(p,2pxn)Co-56			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	31.8 ± 4.0		
1359 ± 2	28.7 ± 3.6		
2600 ± 1	25.6 ± 3.2		

Ni-nat(p,2pxn)Co-57			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	77.4 ± 9.6	( 17)	
1359 ± 2	75.6 ± 9.3	( 15)	
2600 ± 1	64.6 ± 7.9	( 14)	

Ni-nat(p,2pxn)Co-57			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	51.1 ± 6.8		
1359 ± 2	52.2 ± 6.8		
2600 ± 1	42.5 ± 5.6		

Ni-nat(p,2pxn)Co-58m+g			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	20.1 ± 2.5	( 4)	
1359 ± 2	19.6 ± 2.4	( 4)	
2600 ± 1	19.0 ± 2.3	( 5)	

Ni-nat(p,2pxn)Co-60m+g			ind
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	2.38 ± 0.32	( 5)	
1359 ± 2	2.26 ± 0.29	( 6)	
2600 ± 1	2.19 ± 0.30	( 2)	

Ni-nat(p,pxn)Ni-56			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	2.45 ± 0.32	( 14)	
1359 ± 2	2.15 ± 0.28	( 19)	
2600 ± 1	1.96 ± 0.25	( 12)	

Ni-nat(p,pxn)Ni-57			cum
E ± ΔE [MeV]	σ ± Δσ [mb]		
957 ± 2	26.1 ± 3.3	( 11)	
1359 ± 2	23.2 ± 2.9	( 13)	
2600 ± 1	21.9 ± 2.7	( 6)	

## Anhang C - Dicktargetproduktionsraten für $^{44}\text{Ti}$

In Tabelle C.1 und C.2 sind die für  $^{44}\text{Ti}$  gemessenen Produktionsraten P in der Gabbro- und der Eisenkugel angegeben. Für das gemessene Target ist die Tiefe vom Zentrum d, die für die Auswertung benutzte Dosis, Masse sowie der Targetname angegeben.

Tabelle C.1 Experiment Gabbrokugel [LU93].

d [mm]	P [ $10^{-4}\text{g}^{-1}\text{s}^{-1}$ ]	Targetname	Dosis [ $10^{15}\text{cm}^{-2}$ ]	Masse [mg]	Targetelement
44	$0.259 \pm 0.028$	NI062S	0.1322	415.84	Nickel
94	$0.240 \pm 0.020$	NI072S	0.1322	411.11	
145	$0.256 \pm 0.028$	NI082S	0.1322	415.18	
174	$0.270 \pm 0.050$	NI027S	0.1322	415.50	
195	$0.244 \pm 0.027$	NI092S	0.1322	416.96	
246	$0.251 \pm 0.041$	NI102S	0.1322	415.71	
143	$0.261 \pm 0.021$	FE084S	0.1322	391.20	

Tabelle C.2 Experiment Eisenkugel [LY96].

d [mm]	P [ $10^{-4}\text{g}^{-1}\text{s}^{-1}$ ]	Targetname	Dosis [ $10^{15}\text{cm}^{-2}$ ]	Masse [mg]	Targetelement
36.6	$0.443 \pm 0.034$	TI042F	0.2603	411.33	Titan
42.6	$0.449 \pm 0.036$	TI062F	0.2589	404.21	
44.7	$0.447 \pm 0.035$	TI033F	0.2589	408.09	
55.7	$0.453 \pm 0.035$	TI052F	0.2589	406.91	
63.3	$0.416 \pm 0.035$	TI022F	0.2576	410.64	
68.1	$0.390 \pm 0.033$	TI012F	0.2576	410.03	
47.9	$0.224 \pm 0.023$	NI092F	0.2589	379.20	Nickel
63.2	$0.229 \pm 0.022$	NI102F	0.2576	377.49	
80.1	$0.220 \pm 0.038$	NI112F	0.2548	379.19	
91.9	$0.228 \pm 0.041$	NI122F	0.2499	377.87	
32.0	$0.176 \pm 0.017$	MO011F	0.2603	1303.61	Eisen
44.0	$0.173 \pm 0.016$	MO01JF	0.2589	1352.30	
56.0	$0.181 \pm 0.016$	MO01HF	0.2589	1275.21	
68.1	$0.179 \pm 0.016$	MO01FF	0.2576	1257.68	
80.1	$0.164 \pm 0.014$	MO01DF	0.2548	1229.90	
86.1	$0.164 \pm 0.014$	MO01CF	0.2526	1323.74	
92.1	$0.154 \pm 0.014$	MO01BF	0.2499	1236.90	
98.1	$0.155 \pm 0.015$	MO01AF	0.2453	1246.30	

## Anhang D - In dieser Arbeit ausgewertete Targets (Neutronen)

Liste der in dieser Arbeit ausgewerteten Targets der Neutronenbestrahlungen, die zum Zwecke der Aktivierung durchgeführt wurden.

Für die jeweiligen Experimente sind der Foliename nach der Konvention in Kapitel 4.2.1, die Ordnungszahl Z des Folienelementes (für die Quarzfolien QU ist keine Ordnungszahl angegeben), Dicke h und Durchmesser D der Folie sowie deren Masse M. Für jedes Experiment sind die Folien in der Anordnung von oben nach unten eingetragen, in der sie von den Neutronen getroffen wurden. Das heißt, die erste Folie ist die strahlseitige.

Folie	Z	h [mm]	M [mg]	D [mm]	Experimentname	
CUL1002	29.0	1.000	4233.22	25.0	LOUV01, $E_p = 48.5$ MeV	
AGL1001	47.0	1.000	5135.57	25.0		
CUV2000	29.0	1.000	4311.28	25.0	LOUV02, $E_p = 36.4$ MeV	
PBV2001	82.0	2.000	11138.95	25.0		
CUV2001	29.0	4.000	17260.17	25.0		
AGV2001	47.0	4.000	20546.78	25.0		
CUV2002	29.0	2.000	8528.81	25.0		
NIV2001	28.0	4.000	17367.89	25.0		
CUV2003	29.0	2.000	8649.46	25.0		
COV2001	27.0	4.000	18190.61	25.0		
CUV2004	29.0	2.000	8653.09	25.0		
FEV2001	26.0	4.000	14387.38	25.0		
CUV2005	29.0	2.000	8484.82	25.0		
ALV2001	13.0	4.000	5123.03	25.0		
CUV2006	29.0	2.000	8730.90	25.0		
QUV2001	-	4.000	4319.27	25.0		
CUV2007	29.0	2.000	8614.27	25.0		
CCV2001	6.0	4.000	3401.07	25.0		
CUV2008	29.0	2.000	8734.08	25.0		
TEV2001	52.0	1.000	1941.60	20.0		
AGU1001	47.0	5.000	14961.21	19.0	UPPN01, $E_p = 78.1$ MeV	
CUU1001	29.0	5.000	14165.56	20.0		
NIU1001	28.0	6.000	15101.54	19.0		
CUU1002	29.0	2.000	5580.67	20.0		
COU1001	27.0	4.000	10569.14	19.0		
CUU1003	29.0	2.000	5580.18	20.0		
FEU1001	26.0	6.000	12792.81	19.0		
CUU1004	29.0	2.000	5569.60	20.0		
SIU1001	14.0	5.000	3180.57	19.0		(Target nach Stackentnahme zerbrochen; gemessene Masse: 3.00262 g)
CUU1005	29.0	2.000	5598.17	20.0		
QUU1001	-	6.000	4077.51	20.0		
CUU1006	29.0	2.000	5575.11	20.0		
ALU1001	13.0	5.000	3863.65	19.0		
CUU1007	29.0	2.000	5567.78	20.0		
CCU1001	6.0	5.000	2343.66	19.0		
CUU1008	29.0	4.000	11163.25	20.0		
ALU1002	13.0	1.000	817.98	19.0		

PBU9001	82.0	4.000	14151.28	20.0	UPPN09, $E_p = 97.5$ MeV
CUU9001	29.0	5.000	11978.16	19.0	
AGU9001	47.0	4.000	11940.26	19.0	
CUU9002	29.0	2.000	5586.76	20.0	
NIU9001	28.0	6.000	15020.12	19.0	
CUU9003	29.0	2.000	4969.17	19.0	
COU9001	27.0	4.000	10481.62	19.0	
CUU9004	29.0	2.000	4978.12	19.0	
FEU9001	26.0	6.000	13013.09	19.0	
CUU9005	29.0	2.000	4969.99	19.0	
SIU9001	14.0	4.000	2466.40	19.0	(Target nach Stackentnahme zerbrochen; gemessene Masse: 1.31822 g)
CUU9006	29.0	2.000	4982.98	19.0	
QUU9001	-	6.000	4080.62	20.0	
CUU9007	29.0	2.000	4981.99	19.0	
ALU9001	13.0	4.000	3255.50	19.0	
CUU9008	29.0	2.000	4983.70	19.0	
CCU9001	6.0	4.000	1876.78	19.0	
CUU9009	29.0	2.000	4973.49	19.0	
CCU0001	6.0	5.000	2357.87	19.0	UPPN0A, $E_p = 162.7$ MeV
PBUB001	82.0	4.000	14216.90	20.0	UPPN0B, $E_p = 162.7$ MeV
CUUB001	29.0	5.000	12418.57	19.0	
AGUB001	47.0	5.000	14952.54	19.0	
CUUB002	29.0	4.000	10042.61	19.0	
NIUB001	28.0	6.000	15107.31	19.0	
CUUB003	29.0	4.000	10066.56	19.0	
COUB001	27.0	4.000	10505.67	19.0	
CUUB004	29.0	5.000	12574.94	19.0	
FEUB001	26.0	6.000	12790.88	19.0	
CUUB005	29.0	5.000	12290.05	19.0	
SIUB001	14.0	5.000	3303.31	19.0	
CUUB006	29.0	5.000	12312.56	19.0	
QUUB001	-	6.000	4087.12	20.0	
CUP1001	29.0	1.000	4384.75	25.0	PSIN01, $E_p = 71.5$ MeV
AGP1002	47.0	1.000	5133.81	25.0	
AGP1001	47.0	1.000	5126.90	25.0	PSIN02, $E_p = 50.4$ MeV
CUP1002	29.0	1.000	4313.34	25.0	

## Anhang E - Responseintegrale

Für die in Anhang D aufgeführten Folien sind in den folgenden Anhängen E.1 bis E.8 experimentweise die in den Folien gemessenen Responseintegrale angegeben.

Die Struktur der Tabellen ist dieselbe wie die in Anhang C benutzte. Abweichend sind hier jedoch für jede Folie des Stacks die gemessenen Responseintegrale R (Einheit  $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ) nach Gleichung (3.25) eingetragen. Der Name der Folie (zum Beispiel CUL1002; nach Anhang D) ist den in ihr gemessenen R vorangestellt und die Reihenfolge der Folien in den Tabellen entspricht ihrer Anordnung im Stack nach Anhang D. Anstelle der Energie ist die

Position d im Stack eingetragen, die sich für die i-te Folie der Dicke  $h_i$  zu  $d_i = 0.5 \cdot h_i + \sum_{j=1}^{i-1} h_j$  mit  $\Delta d = 0.5 \cdot h_i$  ergibt.

### E.1 Experiment LOUV01

CUL1002			
Cu-nat(n,2pxn)Co-57		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
0.5 ± 0.5	0.572 ± 0.087	( 4 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
0.5 ± 0.5	1.20 ± 0.14	( 5 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-61		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
0.5 ± 0.5	1.21 ± 0.17	( 3 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

AGL1001			
Ag-nat(n,xn)Ag-105m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
1.5 ± 0.5	10.2 ± 1.1	( 23 )	

Ag-nat(n,xn)Ag-106m		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
1.5 ± 0.5	8.56 ± 0.89	( 43 )	

### E.2 Experiment LOUV02

CUV2000			
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
0.5 ± 0.5	5.57 ± 0.56	( 5 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
0.5 ± 0.5	25.4 ± 2.3	( 4 )	

PBV2001			
Pb-nat(n,2pxn)Hg-203		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 ± 1.0	0.414 ± 0.071	( 4 )	

Pb-nat(n,pxn)Tl-201		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 ± 1.0	1.35 ± 0.19	( 2 )	

Pb-nat(n,pxn)Tl-202		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 ± 1.0	0.106 ± 0.020	( 6 )	

Pb-nat(n,xn)Pb-201m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 ± 1.0	1.48 ± 0.16	( 4 )	

Pb-nat(n,xn)Pb-202m		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 ± 1.0	0.558 ± 0.097	( 10 )	

Pb-nat(n,xn)Pb-203m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 ± 1.0	31.7 ± 3.2	( 21 )	

Pb-nat(n,xn)Pb-204m		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 ± 1.0	23.6 ± 2.4	( 7 )	

CUV2001			
Cu-nat(n,3pxn)Fe-59		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
5.0 ± 2.0	0.212 ± 0.029	( 9 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
5.0 ± 2.0	5.27 ± 0.53	( 10 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
5.0 ± 2.0	3.52 ± 0.40	( 6 )	

Cu-nat(n,pxn)Ni-65		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
5.0 ± 2.0	0.597 ± 0.080	( 4 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-61		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
5.0 ± 2.0	10.6 ± 1.1	( 14 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
5.0 ± 2.0	26.9 ± 2.9	( 8 )	

AGV2001			
Ag-nat(n,2pxn)Rh-102m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
9.0 ± 2.0	0.364 ± 0.078	( 5 )	

$T_{1/2} = 209 \text{ d}$  - sehr unsicher; nicht interferenzkorrigiert für Rh-102m

Ag-nat(n,xn)Ag-105m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
9.0 ± 2.0	48.3 ± 5.1	( 34 )	

Ag-nat(n,xn)Ag-106m		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
9.0 ± 2.0	26.7 ± 2.7	( 41 )	

Ag-nat(n,γ)Ag-110m		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
9.0 ± 2.0	0.420 ± 0.058	( 6 )	

CUV2002			
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
12.0 ± 1.0	4.78 ± 0.46	( 2 )	

NIV2001			
Ni-nat(n,3pxn)Mn-54		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
15.0 ± 2.0	2.76 ± 0.26	( 8 )	

Ni-nat(n,2pxn)Fe-59		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
15.0 ± 2.0	0.199 ± 0.037	( 8 )	

Ni-nat(n,pxn)Co-56		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
15.0 ± 2.0	12.6 ± 1.2	( 4 )	

Ni-nat(n,pxn)Co-57		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
15.0 ± 2.0	45.6 ± 3.7	( 8 )	

Ni-nat(n,pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
15.0 ± 2.0	37.9 ± 3.5	( 10 )	

Ni-nat(n,pxn)Co-60m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
15.0 ± 2.0	3.62 ± 0.55	( 5 )	

Ni-nat(n,xn)Ni-56		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
15.0 ± 2.0	0.146 ± 0.017	( 11 )	

Ni-nat(n,xn)Ni-57		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
15.0 ± 2.0	4.65 ± 0.46	( 12 )	

CUV2003			
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 1.0	4.43 ± 0.43	( 4 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64			
Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 1.0	21.4 ± 2.0	( 9 )	

COV2001			
Co-59(n,2p4n)Mn-54		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 2.0	4.32 ± 0.38	( 3 )	

Co-59(n,2p2n)Mn-56			
Co-59(n,2p2n)Mn-56		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 2.0	1.45 ± 0.16	( 3 )	

Co-59(n,p)Fe-59			
Co-59(n,p)Fe-59		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 2.0	3.93 ± 0.39	( 7 )	

Co-59(n,3n)Co-57			
Co-59(n,3n)Co-57		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 2.0	24.9 ± 2.1	( 8 )	

Co-59(n,2n)Co-58m+g			
Co-59(n,2n)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 2.0	50.6 ± 4.9	( 4 )	

Co-59(n,γ)Co-60m+g			
Co-59(n,γ)Co-60m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 2.0	2.58 ± 0.43	( 6 )	

CUV2004			
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
24.0 ± 1.0	4.00 ± 0.40	( 3 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64			
Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
24.0 ± 1.0	20.2 ± 2.0	( 4 )	

FEV2001			
Fe-nat(n,2pxn)Cr-51		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
27.0 ± 2.0	2.27 ± 0.25	( 7 )	

Fe-nat(n,pxn)Mn-52m+g			
Fe-nat(n,pxn)Mn-52m+g		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
27.0 ± 2.0	0.521 ± 0.054	( 10 )	

Fe-nat(n,pxn)Mn-54			
Fe-nat(n,pxn)Mn-54		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
27.0 ± 2.0	20.2 ± 1.7	( 10 )	

Fe-nat(n,pxn)Mn-56			
Fe-nat(n,pxn)Mn-56		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
27.0 ± 2.0	5.27 ± 0.58	( 4 )	

Fe-nat(n,xn)Fe-52m+g			
Fe-nat(n,xn)Fe-52m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
27.0 ± 2.0	0.0143 ± 0.0035	( 3 )	

CUV2005			
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 1.0	3.87 ± 0.41	( 7 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64			
Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 1.0	18.5 ± 1.7	( 9 )	

ALV2001			
Al-27(n,2p4n)Na-22		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
33.0 ± 2.0	0.711 ± 0.168	( 3 )	

Al-27(n,2p2n)Na-24			
Al-27(n,2p2n)Na-24		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
33.0 ± 2.0	4.53 ± 0.43	( 4 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

CUV2006			
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	3.57 ± 0.37	( 6 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64			
Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	16.5 ± 1.5	( 4 )	

QUV2001			
Si-nat(n,3pxn)Na-24		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
39.0 ± 2.0	1.72 ± 0.20	( 3 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

CUV2007			
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	3.34 ± 0.34	( 6 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64			
Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	16.1 ± 1.4	( 7 )	

CCV2001			
c-nat(n,xn)c-11		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
45.0 ± 2.0	1.12 ± 0.12	( 3 )	

CUV2008			
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
48.0 ± 1.0	3.19 ± 0.34	( 6 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64			
Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
48.0 ± 1.0	15.4 ± 1.4	( 4 )	

TEV2001  
Das Target wurde aus Zeitgründen nicht ausgewertet.

## E.3 Experiment UPPN01

AGU1001			
Ag-nat(n,4pxn)Tc-96m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	0.766 ± 0.097	( 9 )	

Ag-nat(n,3pxn)Ru-103			
Ag-nat(n,3pxn)Ru-103		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	1.04 ± 0.12	( 7 )	

Ag-nat(n,2pxn)Rh-99m+g			
Ag-nat(n,2pxn)Rh-99m+g		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	2.09 ± 0.26	( 15 )	

Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m+g			
Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m+g		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	8.68 ± 1.35	( 3 )	

Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m			
Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	33.0 ± 3.4	( 14 )	

Ag-nat(n,2pxn)Rh-105m+g			
Ag-nat(n,2pxn)Rh-105m+g		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	12.4 ± 1.3	( 2 )	

unsicher

Ag-nat(n,pxn)Pd-101			
Ag-nat(n,pxn)Pd-101		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	9.37 ± 1.18	( 4 )	

Ag-nat(n,xn)Ag-104m+g			
Ag-nat(n,xn)Ag-104m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	108 ± 12	( 24 )	

Ag-nat(n,xn)Ag-105m+g			
Ag-nat(n,xn)Ag-105m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	305 ± 30	( 27 )	

Ag-nat(n,xn)Ag-106m			
Ag-nat(n,xn)Ag-106m		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	187 ± 18	( 45 )	

Ag-nat(n,γ)Ag-110m			
Ag-nat(n,γ)Ag-110m		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
2.5 ± 2.5	162 ± 16	( 47 )	

CUU1001			
Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	0.123 ± 0.017	( 10 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54			
Cu-nat(n,4pxn)Mn-54		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	3.03 ± 0.26	( 3 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-56			
Cu-nat(n,4pxn)Mn-56		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	2.34 ± 0.31	( 6 )	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59			
Cu-nat(n,3pxn)Fe-59		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	3.74 ± 0.37	( 9 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56			
Cu-nat(n,2pxn)Co-56		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	3.71 ± 0.39	( 7 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57			
Cu-nat(n,2pxn)Co-57		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	22.2 ± 1.9	( 7 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g			
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	52.3 ± 5.3	( 10 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g			
Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	39.3 ± 4.0	( 7 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-61			
Cu-nat(n,2pxn)Co-61		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	17.1 ± 3.8	( 4 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

Cu-nat(n,pxn)Ni-65			
Cu-nat(n,pxn)Ni-65		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	4.37 ± 0.60	( 7 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-60			
Cu-nat(n,xn)Cu-60		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	6.62 ± 0.72	( 2 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-61			
Cu-nat(n,xn)Cu-61		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	50.4 ± 5.0	( 10 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

Cu-nat(n,xn)Cu-64			
Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	415 ± 38	( 6 )	

Cu-nat(p,n)Zn-65			
Cu-nat(p,n)Zn-65		ind	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
7.5 ± 2.5	0.386 ± 0.081	( 3 )	

NIU1001			
Ni-nat(n,5pxn)v-48		cum	
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		

Ni-nat(n,pxn)Co-55 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
13.0 ± 3.0	12.0 ± 1.2	( 12)		

Ni-nat(n,pxn)Co-56 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
13.0 ± 3.0	103 ± 10	( 25)		

Ni-nat(n,pxn)Co-57 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
13.0 ± 3.0	335 ± 27	( 6)		

Ni-nat(n,pxn)Co-58m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
13.0 ± 3.0	205 ± 24	( 4)		

Ni-nat(n,pxn)Co-60m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
13.0 ± 3.0	19.7 ± 2.3	( 2)		

Ni-nat(n,xn)Ni-56 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
13.0 ± 3.0	2.02 ± 0.21	( 8)		

Ni-nat(n,xn)Ni-57 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
13.0 ± 3.0	40.0 ± 3.8	( 14)		

CUU1002 Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
17.0 ± 1.0	2.87 ± 0.26	( 3)		

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
17.0 ± 1.0	3.62 ± 0.39	( 6)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
17.0 ± 1.0	3.07 ± 0.37	( 9)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
17.0 ± 1.0	20.0 ± 1.7	( 6)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
17.0 ± 1.0	48.3 ± 4.5	( 3)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
17.0 ± 1.0	35.0 ± 3.9	( 4)		

COU1001 Co-59(n,3p6n)Cr-51 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	6.84 ± 0.85	( 5)		

Co-59(n,2p6n)Mn-52m+g cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	4.30 ± 0.43	( 14)		

Co-59(n,2p4n)Mn-54 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	48.9 ± 4.1	( 5)		

Co-59(n,2p2n)Mn-56 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	24.0 ± 2.6	( 6)		

Co-59(n,p)Fe-59 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	22.0 ± 2.2	( 8)		

Co-59(n,5n)Co-55 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	1.41 ± 0.17	( 7)		

Co-59(n,4n)Co-56 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	22.3 ± 2.4	( 8)		

Co-59(n,3n)Co-57 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	139 ± 12	( 12)		

Co-59(n,2n)Co-58m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	295 ± 29	( 8)		

Co-59(n,γ)Co-60m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
20.0 ± 2.0	223 ± 21	( 8)		

CUU1003 Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
23.0 ± 1.0	2.79 ± 0.26	( 3)		

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
23.0 ± 1.0	3.22 ± 0.37	( 4)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
23.0 ± 1.0	2.96 ± 0.40	( 6)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
23.0 ± 1.0	18.3 ± 1.5	( 5)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
23.0 ± 1.0	45.1 ± 4.2	( 2)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
23.0 ± 1.0	32.6 ± 3.4	( 4)		

FEU1001 Fe-nat(n,5pxn)Sc-44m ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	0.0602 ± 0.0095	( 5)		

Fe-nat(n,5pxn)Sc-46m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	0.913 ± 0.109	( 9)		

Fe-nat(n,5pxn)Sc-47 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	0.590 ± 0.052	( 9)		

Fe-nat(n,3pxn)v-48 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	2.50 ± 0.25	( 11)		

Fe-nat(n,2pxn)Cr-48 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	0.0569 ± 0.0106	( 3)		

Fe-nat(n,2pxn)Cr-49 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	1.28 ± 0.25	( 2)		

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

Fe-nat(n,2pxn)Cr-51 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	48.2 ± 3.9	( 6)		

Fe-nat(n,pxn)Mn-52m+g cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	17.6 ± 1.7	( 18)		

Fe-nat(n,pxn)Mn-54 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	164 ± 13	( 5)		

Fe-nat(n,pxn)Mn-56 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	34.3 ± 3.4	( 7)		

Fe-nat(n,xn)Fe-52m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	0.348 ± 0.049	( 2)		

Fe-nat(n,γ)Fe-59 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	0.412 ± 0.069	( 8)		

Fe-nat(p,xn)Co-56 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
27.0 ± 3.0	0.287 ± 0.073	( 2)		

CUU1004 Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
31.0 ± 1.0	2.67 ± 0.28	( 3)		

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
31.0 ± 1.0	2.98 ± 0.32	( 4)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
31.0 ± 1.0	2.75 ± 0.35	( 3)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
31.0 ± 1.0	17.1 ± 1.4	( 4)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
31.0 ± 1.0	42.2 ± 4.5	( 5)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
31.0 ± 1.0	31.4 ± 3.5	( 6)		

SIU1001 Si-nat(n,3pxn)Na-22 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
34.5 ± 2.5	8.52 ± 0.87	( 3)		

Si-nat(n,3pxn)Na-24 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
34.5 ± 2.5	11.4 ± 1.1	( 5)		

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

Si-nat(n,2pxn)Mg-28 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
34.5 ± 2.5	0.266 ± 0.055	( 10)		

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

CUU1005 Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
38.0 ± 1.0	2.55 ± 0.26	( 3)		

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
38.0 ± 1.0	2.91 ± 0.34	( 5)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
38.0 ± 1.0	2.68 ± 0.34	( 7)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
38.0 ± 1.0	16.4 ± 1.3	( 4)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
38.0 ± 1.0	40.4 ± 3.8	( 3)		

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
38.0 ± 1.0	30.4 ± 3.4	( 6)		

#### QUU1001

O-nat(n,4pxn)Be-7 ind				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
42.0 ± 3.0	1.73 ± 0.25	( 5)		

Si-nat(n,3pxn)Na-22 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
42.0 ± 3.0	8.61 ± 1.08	( 3)		

Si-nat(n,3pxn)Na-24 cum				
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]			
42.0 ± 3.0	11.6 ± 1.2	( 4)		

Al-27(n,2p2n)Na-24			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
49.5 $\pm$ 2.5	30.2 $\pm$ 2.9	( 4)	
Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.			
CUU1007			ind
Cu-nat(n,4pxn)Mn-54			
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
53.0 $\pm$ 1.0	2.01 $\pm$ 0.22	( 4)	
Cu-nat(n,3pxn)Fe-59			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
53.0 $\pm$ 1.0	2.65 $\pm$ 0.33	( 7)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-56			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
53.0 $\pm$ 1.0	2.41 $\pm$ 0.27	( 3)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-57			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
53.0 $\pm$ 1.0	14.6 $\pm$ 1.2	( 5)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
53.0 $\pm$ 1.0	38.0 $\pm$ 3.5	( 5)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
53.0 $\pm$ 1.0	26.7 $\pm$ 2.9	( 3)	

CCU1001			ind
c-nat(n,2pxn)Be-7			
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
56.5 $\pm$ 2.5	4.83 $\pm$ 0.53	( 2)	
c-nat(n,xn)c-11			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
56.5 $\pm$ 2.5	14.1 $\pm$ 1.4	( 3)	
CUU1008			cum
Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g			
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
61.0 $\pm$ 2.0	0.0839 $\pm$ 0.0119	( 6)	
Cu-nat(n,4pxn)Mn-54			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
61.0 $\pm$ 2.0	2.04 $\pm$ 0.20	( 5)	
Cu-nat(n,3pxn)Fe-59			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
61.0 $\pm$ 2.0	2.43 $\pm$ 0.26	( 8)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-56			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
61.0 $\pm$ 2.0	2.25 $\pm$ 0.24	( 4)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
61.0 $\pm$ 2.0	14.3 $\pm$ 1.2	( 9)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
61.0 $\pm$ 2.0	34.3 $\pm$ 3.3	( 6)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
61.0 $\pm$ 2.0	24.6 $\pm$ 2.6	( 8)	
ALU1002			cum
Al-27(n,2p4n)Na-22			
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
63.5 $\pm$ 0.5	9.75 $\pm$ 1.20	( 2)	
Al-27(n,2p2n)Na-24			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
63.5 $\pm$ 0.5	28.7 $\pm$ 2.8	( 4)	
Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.			

## E.4 Experiment UPPN09

PBU9001			cum
Pb-nat(n,42pxn)Zr-95			
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	0.622 $\pm$ 0.086	( 15)	
Pb-nat(n,38pxn)Ru-103			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	0.670 $\pm$ 0.082	( 5)	
Pb-nat(n,3pxn)Au-196m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	0.275 $\pm$ 0.046	( 4)	
Pb-nat(n,2pxn)Hg-203			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	8.82 $\pm$ 0.77	( 7)	
Pb-nat(n,pxn)Tl-199			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	194 $\pm$ 23	( 7)	
Pb-nat(n,pxn)Tl-201			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	369 $\pm$ 39	( 9)	
Pb-nat(n,pxn)Tl-202			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	103 $\pm$ 10	( 14)	
Pb-nat(n,xn)Pb-199m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	102 $\pm$ 12	( 8)	
Pb-nat(n,xn)Pb-200			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	244 $\pm$ 25	( 22)	
Pb-nat(n,xn)Pb-201m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	318 $\pm$ 33	( 7)	
Pb-nat(n,xn)Pb-202m			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	163 $\pm$ 16	( 5)	
Pb-nat(n,xn)Pb-203m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	533 $\pm$ 53	( 12)	
Pb-nat(n,xn)Pb-204m			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	254 $\pm$ 25	( 12)	
Pb-nat(p,xn)Bi-205			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	2.85 $\pm$ 0.50	( 4)	
Pb-nat(p,xn)Bi-206			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
2.0 $\pm$ 2.0	2.71 $\pm$ 0.33	( 19)	

CUU9001			cum
Cu-nat(n,5pxn)Cr-51			
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	1.48 $\pm$ 0.23	( 7)	
Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	0.734 $\pm$ 0.082	( 23)	
Cu-nat(n,4pxn)Mn-54			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	10.3 $\pm$ 0.9	( 13)	
Cu-nat(n,4pxn)Mn-56			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	4.27 $\pm$ 0.55	( 5)	
Cu-nat(n,3pxn)Fe-59			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	6.28 $\pm$ 0.62	( 18)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-55			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	0.471 $\pm$ 0.057	( 5)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-56			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	6.91 $\pm$ 0.76	( 23)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-57			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	43.8 $\pm$ 3.7	( 14)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	88.7 $\pm$ 8.5	( 16)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	57.1 $\pm$ 5.6	( 6)	
Cu-nat(n,2pxn)Co-61			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	19.3 $\pm$ 6.1	( 6)	
Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.			
Cu-nat(n,2pxn)Co-62m			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	3.06 $\pm$ 0.60	( 2)	
Cu-nat(n,pxn)Ni-57			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	0.480 $\pm$ 0.059	( 7)	
Cu-nat(n,pxn)Ni-65			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	5.09 $\pm$ 0.70	( 5)	

Cu-nat(n,xn)Cu-60			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	8.97 $\pm$ 1.24	( 5)	
Cu-nat(n,xn)Cu-61			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	72.4 $\pm$ 7.5	( 13)	
Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.			
Cu-nat(n,xn)Cu-64			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	511 $\pm$ 47	( 6)	
Cu-nat(p,n)Zn-65			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
6.5 $\pm$ 2.5	0.576 $\pm$ 0.115	( 4)	
AGU9001			ind
Ag-nat(n,4pxn)Tc-96m+g			
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
11.0 $\pm$ 2.0	1.91 $\pm$ 0.21	( 8)	
Ag-nat(n,3pxn)Ru-97			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
11.0 $\pm$ 2.0	5.03 $\pm$ 0.50	( 13)	
Ag-nat(n,3pxn)Ru-103			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
11.0 $\pm$ 2.0	1.84 $\pm$ 0.21	( 10)	
Ag-nat(n,2pxn)Rh-99m+g			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
11.0 $\pm$ 2.0	4.22 $\pm$ 0.47	( 5)	
Ag-nat(n,2pxn)Rh-99m			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
11.0 $\pm$ 2.0	14.8 $\pm$ 1.6	( 4)	
Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.			
Ag-nat(n,2pxn)Rh-100m+g			ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
11.0 $\pm$ 2.0	33.3 $\pm$ 4.0	( 11)	
Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m+g			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
11.0 $\pm$ 2.0	18.0 $\pm$ 2.0	( 8)	
Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
11.0 $\pm$ 2.0	87.9 $\pm$ 8.7	( 14)	
Ag-nat(n,2pxn)Rh-105m+g			cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]		
11.0 $\pm$ 2.0	13.4 $\pm$ 1.6	( 7)	

Ag-nat(n,pxn)Pd-100 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
11.0 ± 2.0	10.6 ± 1.2	( 13)	

Ag-nat(n,pxn)Pd-101 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
11.0 ± 2.0	40.1 ± 4.7	( 4)	

Ag-nat(n,xn)Ag-103m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
11.0 ± 2.0	76.4 ± 8.0	( 6)	

Ag-nat(n,xn)Ag-104m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
11.0 ± 2.0	137 ± 16	( 24)	

Ag-nat(n,xn)Ag-105m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
11.0 ± 2.0	372 ± 38	( 60)	

Ag-nat(n,xn)Ag-106m ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
11.0 ± 2.0	216 ± 21	( 90)	

Ag-nat(n,γ)Ag-110m ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
11.0 ± 2.0	217 ± 21	( 76)	

## CUU9002

Cu-nat(n,5pxn)Cr-51 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
14.0 ± 1.0	1.68 ± 0.34	( 4)	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
14.0 ± 1.0	0.731 ± 0.080	( 10)	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
14.0 ± 1.0	9.98 ± 0.87	( 6)	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
14.0 ± 1.0	5.99 ± 0.60	( 11)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
14.0 ± 1.0	6.58 ± 0.76	( 8)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
14.0 ± 1.0	42.1 ± 3.4	( 6)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
14.0 ± 1.0	85.8 ± 8.2	( 7)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
14.0 ± 1.0	56.5 ± 5.9	( 6)	

Cu-nat(n,pxn)Ni-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
14.0 ± 1.0	0.435 ± 0.053	( 4)	

## NIU9001

Ni-nat(n,5pxn)v-48 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	3.79 ± 0.38	( 12)	

Ni-nat(n,4pxn)Cr-48 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	0.162 ± 0.030	( 7)	

Ni-nat(n,4pxn)Cr-51 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	36.9 ± 3.1	( 7)	

Ni-nat(n,3pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	21.0 ± 2.0	( 11)	

Ni-nat(n,3pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	57.6 ± 4.8	( 10)	

Ni-nat(n,3pxn)Mn-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	7.60 ± 0.91	( 3)	

Ni-nat(n,2pxn)Fe-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	0.829 ± 0.110	( 5)	

Ni-nat(n,2pxn)Fe-59 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	2.05 ± 0.26	( 7)	

Ni-nat(n,pxn)Co-55 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	20.2 ± 2.0	( 16)	

Ni-nat(n,pxn)Co-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	135 ± 13	( 5)	

Ni-nat(n,pxn)Co-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	403 ± 32	( 10)	

Ni-nat(n,pxn)Co-58m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	269 ± 25	( 2)	

Ni-nat(n,pxn)Co-60m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	23.7 ± 2.7	( 4)	

Ni-nat(n,xn)Ni-56 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	3.04 ± 0.33	( 12)	

Ni-nat(n,xn)Ni-57 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
18.0 ± 3.0	50.4 ± 4.8	( 11)	

## CUU9003

Cu-nat(n,5pxn)Cr-51 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	1.22 ± 0.20	( 3)	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	0.667 ± 0.076	( 13)	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	9.44 ± 0.84	( 7)	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	5.56 ± 0.59	( 14)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-55 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	0.455 ± 0.089	( 5)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	6.11 ± 0.71	( 10)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	39.2 ± 3.4	( 6)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	77.9 ± 7.2	( 8)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	51.3 ± 5.4	( 9)	

Cu-nat(n,pxn)Ni-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	0.425 ± 0.059	( 6)	

Cu-nat(n,xn)Cu-64 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
22.0 ± 1.0	442 ± 51	( 4)	

## COU9001

Co-59(n,6p7n)Sc-47 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	0.227 ± 0.026	( 7)	

Co-59(n,4p8n)v-48 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	1.17 ± 0.14	( 6)	

Co-59(n,3p6n)Cr-51 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	21.7 ± 2.2	( 11)	

Co-59(n,2p6n)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	7.07 ± 0.70	( 30)	

Co-59(n,2p4n)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	80.2 ± 6.6	( 15)	

Co-59(n,2p2n)Mn-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	28.7 ± 3.2	( 3)	

Co-59(n,p)Fe-59 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	26.2 ± 2.6	( 30)	

Co-59(n,5n)Co-55 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	2.47 ± 0.33	( 4)	

Co-59(n,4n)Co-56 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	30.7 ± 3.3	( 19)	

Co-59(n,3n)Co-57 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	168 ± 14	( 25)	

Co-59(n,2n)Co-58m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	350 ± 35	( 25)	

Co-59(n,γ)Co-60m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
25.0 ± 2.0	278 ± 26	( 12)	

## CUU9004

Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
28.0 ± 1.0	0.633 ± 0.067	( 9)	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
28.0 ± 1.0	8.58 ± 0.77	( 7)	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
28.0 ± 1.0	5.15 ± 0.53	( 10)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-55 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
28.0 ± 1.0	0.382 ± 0.062	( 2)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
28.0 ± 1.0	6.06 ± 0.73	( 13)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
28.0 ± 1.0	36.6 ± 3.2	( 8)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
28.0 ± 1.0	74.6 ± 6.9	( 6)	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
28.0 ± 1.0	48.0 ± 5.4	( 9)	

Cu-nat(n,pxn)Ni-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
28.0 ± 1.0	0.392 ± 0.046	( 2)	

Fe-nat(n,2pxn)Cr-51 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
32.0 ± 3.0	84.2 ± 6.8	( 9 )	

Fe-nat(n,pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
32.0 ± 3.0	26.8 ± 2.6	( 25 )	

Fe-nat(n,pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
32.0 ± 3.0	215 ± 17	( 14 )	

Fe-nat(n,pxn)Mn-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
32.0 ± 3.0	36.3 ± 3.5	( 3 )	

Fe-nat(n,xn)Fe-52m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
32.0 ± 3.0	0.634 ± 0.077	( 5 )	

Fe-nat(n,γ)Fe-59 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
32.0 ± 3.0	0.542 ± 0.086	( 11 )	

Fe-nat(p,xn)Co-56 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
32.0 ± 3.0	0.824 ± 0.100	( 6 )	

CUU9005 Cu-nat(n,5pxn)Cr-51 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	1.02 ± 0.25	( 3 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	0.601 ± 0.077	( 13 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	7.89 ± 0.72	( 4 )	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	4.82 ± 0.52	( 13 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	5.40 ± 0.63	( 9 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	33.9 ± 2.8	( 8 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	68.3 ± 6.4	( 7 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	44.8 ± 5.1	( 10 )	

Cu-nat(n,pxn)Ni-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	0.388 ± 0.057	( 4 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
36.0 ± 1.0	538 ± 56	( 3 )	

SIU9001 Si-nat(n,10pxn)Be-7 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
39.0 ± 2.0	0.671 ± 0.188	( 3 )	

Si-nat(n,3pxn)Na-22 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
39.0 ± 2.0	15.7 ± 1.7	( 4 )	

Si-nat(n,3pxn)Na-24 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
39.0 ± 2.0	16.2 ± 1.6	( 4 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

Si-nat(n,2pxn)Mg-28 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
39.0 ± 2.0	0.441 ± 0.085	( 8 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

CUU9006 Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	0.553 ± 0.061	( 7 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	7.52 ± 0.69	( 5 )	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	4.60 ± 0.46	( 8 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	5.22 ± 0.60	( 8 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	31.8 ± 2.6	( 5 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	65.7 ± 6.1	( 5 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	42.8 ± 4.8	( 6 )	

Cu-nat(n,pxn)Ni-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
42.0 ± 1.0	0.359 ± 0.051	( 4 )	

QUU9001 O-nat(n,10pxn)Be-7 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
46.0 ± 3.0	3.11 ± 0.40	( 3 )	

Si-nat(n,3pxn)Na-22 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
46.0 ± 3.0	15.8 ± 1.7	( 3 )	

Si-nat(n,3pxn)Na-24 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
46.0 ± 3.0	15.8 ± 1.5	( 4 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

Si-nat(n,2pxn)Mg-28 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
39.0 ± 2.0	0.418 ± 0.084	( 8 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

CUU9007 Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	0.547 ± 0.061	( 11 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	7.42 ± 0.65	( 4 )	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	4.30 ± 0.45	( 7 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-55 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	0.352 ± 0.045	( 3 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	4.79 ± 0.54	( 8 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	30.3 ± 2.6	( 10 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	61.8 ± 5.8	( 9 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	39.4 ± 4.2	( 6 )	

Cu-nat(n,pxn)Ni-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	0.335 ± 0.044	( 6 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
50.0 ± 1.0	556 ± 52	( 3 )	

ALU9001 Al-27(n,9p12n)Be-7 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
53.0 ± 2.0	0.364 ± 0.061	( 3 )	

Al-27(n,2p4n)Na-22 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
53.0 ± 2.0	16.3 ± 1.6	( 4 )	

Al-27(n,2p2n)Na-24 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
53.0 ± 2.0	42.2 ± 4.0	( 3 )	

Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.

CUU9008 Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
56.0 ± 1.0	0.515 ± 0.054	( 8 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
56.0 ± 1.0	7.10 ± 0.67	( 6 )	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
56.0 ± 1.0	4.20 ± 0.43	( 8 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
56.0 ± 1.0	4.79 ± 0.61	( 10 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
56.0 ± 1.0	29.6 ± 2.5	( 8 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
56.0 ± 1.0	60.0 ± 5.6	( 6 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
56.0 ± 1.0	38.5 ± 4.2	( 7 )	

Cu-nat(n,pxn)Ni-57 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
56.0 ± 1.0	0.333 ± 0.050	( 4 )	

CCU9001 c-nat(n,2pxn)Be-7 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
59.0 ± 2.0	7.99 ± 0.81	( 3 )	

c-nat(n,xn)c-11 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
59.0 ± 2.0	24.4 ± 2.3	( 3 )	

CUU9009 Cu-nat(n,5pxn)Cr-51 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
62.0 ± 1.0	0.999 ± 0.192	( 3 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
62.0 ± 1.0	0.511 ± 0.054	( 13 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54 ind			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
62.0 ± 1.0	7.26 ± 0.69	( 8 )	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
62.0 ± 1.0	4.37 ± 0.45	( 13 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-55 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
62.0 ± 1.0	0.281 ± 0.034	( 2 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56 cum			
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
62.0 ± 1.0			

## E.5 Experiment UPPN0A

CCU0001		ind	
c-nat(n,xn)c-11	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	4.57 ± 0.43	( 4 )

## E.6 Experiment UPPN0B

PBUB001		cum	
Pb-nat(n,42pxn)Zr-95	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	0.265 ± 0.044	( 11 )

Pb-nat(n,40pxn)Mo-99		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	0.522 ± 0.112	( 4 )

Pb-nat(n,38pxn)Ru-103		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	0.294 ± 0.040	( 3 )

Pb-nat(n,3pxn)Au-196m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	0.508 ± 0.062	( 10 )

Pb-nat(n,3pxn)Au-198m		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	0.253 ± 0.068	( 2 )

Pb-nat(n,3pxn)Au-199		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	0.353 ± 0.092	( 2 )

unsicher

Pb-nat(n,2pxn)Hg-195m		Ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	1.93 ± 0.27	( 6 )

Pb-nat(n,2pxn)Hg-197m		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	2.58 ± 0.53	( 5 )

Pb-nat(n,2pxn)Hg-203		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	1.57 ± 0.16	( 4 )

Pb-nat(n,pxn)Tl-199		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	41.7 ± 6.2	( 5 )

Pb-nat(n,pxn)Tl-200		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	16.4 ± 6.2	( 9 )

Pb-nat(n,pxn)Tl-201		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	49.3 ± 6.1	( 6 )

Pb-nat(n,pxn)Tl-202		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	16.3 ± 1.6	( 9 )

Pb-nat(n,xn)Pb-199m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	24.1 ± 4.5	( 7 )

Pb-nat(n,xn)Pb-200		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	28.6 ± 3.8	( 20 )

Pb-nat(n,xn)Pb-201m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	33.2 ± 3.9	( 7 )

Pb-nat(n,xn)Pb-202m		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	18.5 ± 2.2	( 4 )

Pb-nat(n,xn)Pb-203m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	52.8 ± 5.4	( 18 )

Pb-nat(n,xn)Pb-204m		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	31.1 ± 3.6	( 5 )

Die Produktion von Bi-204 wurde bei der Auswertung nicht berücksichtigt.

Pb-nat(p,xn)Bi-203		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	2.72 ± 0.42	( 2 )

Pb-nat(p,xn)Bi-204		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	4.13 ± 0.48	( 2 )

Pb-nat(p,xn)Bi-206		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	2.0 ± 2.0	3.52 ± 0.37	( 15 )

CUUB001		ind	
Cu-nat(n,8pxn)Sc-46m+g	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	0.0517 ± 0.0152	( 9 )

Cu-nat(n,8pxn)Sc-47		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	0.0377 ± 0.0051	( 4 )

Cu-nat(n,6pxn)v-48		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	0.120 ± 0.016	( 7 )

Cu-nat(n,5pxn)Cr-51		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	1.22 ± 0.14	( 5 )

Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	0.481 ± 0.052	( 18 )

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	3.31 ± 0.29	( 8 )

Cu-nat(n,4pxn)Mn-56		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	1.05 ± 0.18	( 4 )

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	0.952 ± 0.101	( 14 )

Cu-nat(n,2pxn)Co-55		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	0.211 ± 0.034	( 6 )

Cu-nat(n,2pxn)Co-56		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	1.75 ± 0.20	( 9 )

Cu-nat(n,2pxn)Co-57		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	7.66 ± 0.67	( 11 )

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	12.9 ± 1.3	( 5 )

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	7.44 ± 0.82	( 8 )

Cu-nat(n,pxn)Ni-57		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	0.174 ± 0.027	( 11 )

Cu-nat(n,pxn)Ni-65		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	0.635 ± 0.136	( 3 )

Cu-nat(n,xn)Cu-60		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	1.21 ± 0.23	( 2 )

unsicher

Cu-nat(n,xn)Cu-61		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	8.38 ± 1.17	( 12 )

Cu-nat(n,xn)Cu-64		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	99.8 ± 11.3	( 5 )

Cu-nat(p,n)Zn-65		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	6.5 ± 2.5	0.321 ± 0.060	( 3 )

AGUB001		ind	
Ag-nat(n,4pxn)Tc-96m+g	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	1.49 ± 0.16	( 16 )

Ag-nat(n,3pxn)Ru-97		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	4.34 ± 0.46	( 13 )

Ag-nat(n,3pxn)Ru-103		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	0.361 ± 0.045	( 8 )

Ag-nat(n,2pxn)Rh-99m+g		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	1.54 ± 0.16	( 6 )

Ag-nat(n,2pxn)Rh-99m		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	6.32 ± 0.67	( 3 )

Ag-nat(n,2pxn)Rh-100m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	8.22 ± 1.28	( 18 )

Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m+g		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	3.63 ± 0.44	( 5 )

Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	18.6 ± 1.9	( 11 )

Ag-nat(n,2pxn)Rh-105m+g		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	1.90 ± 0.26	( 5 )

Ag-nat(n,pxn)Pd-100		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	4.14 ± 0.47	( 12 )

Ag-nat(n,pxn)Pd-101		cum	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	8.69 ± 1.08	( 9 )

Ag-nat(n,xn)Ag-103m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	9.09 ± 1.59	( 7 )

Ag-nat(n,xn)Ag-104m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	13.2 ± 2.0	( 16 )

Ag-nat(n,xn)Ag-105m+g		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	36.8 ± 3.9	( 37 )

Ag-nat(n,xn)Ag-106m		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	22.3 ± 2.2	( 58 )

Ag-nat(n,γ)Ag-110m		ind	
	d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]	( )
	11.5 ± 2.5	45.5 ± 4.5	( 51 )

## CUUB002

Cu-nat(n,8pxn)Sc-46m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	0.0458 ± 0.0135	( 5 )	

Cu-nat(n,8pxn)Sc-47			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	0.0362 ± 0.0064	( 5 )	

Cu-nat(n,6pxn)v-48			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	0.110 ± 0.015	( 7 )	

Cu-nat(n,5pxn)Cr-51			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	1.14 ± 0.14	( 9 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	0.458 ± 0.049	( 25 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	3.14 ± 0.29	( 13 )	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	0.911 ± 0.102	( 19 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-55			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	0.158 ± 0.029	( 4 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	1.70 ± 0.20	( 14 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	7.29 ± 0.60	( 13 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	12.4 ± 1.2	( 3 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	7.26 ± 0.83	( 8 )	

Cu-nat(n,pxn)Ni-57			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	0.175 ± 0.029	( 8 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
16.0 ± 2.0	96.4 ± 12.4	( 3 )	

## NIUB001

Ni-nat(n,7pxn)Sc-44m			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	0.144 ± 0.021	( 6 )	

Ni-nat(n,7pxn)Sc-46m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	0.215 ± 0.036	( 10 )	

Ni-nat(n,5pxn)v-48			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	1.60 ± 0.17	( 22 )	

Ni-nat(n,4pxn)Cr-48			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	0.0852 ± 0.0175	( 8 )	

Ni-nat(n,4pxn)Cr-51			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	8.08 ± 0.76	( 12 )	

Ni-nat(n,3pxn)Mn-52m+g			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	3.81 ± 0.36	( 18 )	

Ni-nat(n,3pxn)Mn-54			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	8.12 ± 0.67	( 9 )	

Ni-nat(n,3pxn)Mn-56			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	1.58 ± 0.25	( 2 )	

Ni-nat(n,2pxn)Fe-52m+g			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	0.186 ± 0.024	( 3 )	

Ni-nat(n,2pxn)Fe-59			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	0.255 ± 0.044	( 12 )	

Ni-nat(n,pxn)Co-55			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	2.85 ± 0.30	( 8 )	

Ni-nat(n,pxn)Co-56			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	16.0 ± 1.5	( 12 )	

Ni-nat(n,pxn)Co-57			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	44.5 ± 3.6	( 10 )	

Ni-nat(n,pxn)Co-58m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	35.1 ± 3.9	( 7 )	

Ni-nat(n,pxn)Co-60m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	2.96 ± 0.43	( 6 )	

Ni-nat(n,xn)Ni-56			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	0.465 ± 0.052	( 14 )	

Ni-nat(n,xn)Ni-57			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
21.0 ± 3.0	6.89 ± 0.68	( 11 )	

## CUUB003

Cu-nat(n,8pxn)Sc-46m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	0.0490 ± 0.0143	( 4 )	

Cu-nat(n,8pxn)Sc-47			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	0.0283 ± 0.0051	( 3 )	

Cu-nat(n,6pxn)v-48			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	0.102 ± 0.014	( 5 )	

Cu-nat(n,5pxn)Cr-51			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	1.06 ± 0.11	( 3 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	0.404 ± 0.045	( 15 )	

Cu-nat(n,4pxn)Mn-54			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	2.80 ± 0.23	( 6 )	

Cu-nat(n,3pxn)Fe-59			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	0.776 ± 0.091	( 12 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-55			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	0.143 ± 0.023	( 3 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-56			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	1.52 ± 0.17	( 8 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-57			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	6.66 ± 0.57	( 13 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	11.3 ± 1.1	( 4 )	

Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	6.58 ± 0.74	( 5 )	

Cu-nat(n,pxn)Ni-57			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	0.136 ± 0.019	( 6 )	

Cu-nat(n,xn)Cu-64			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
26.0 ± 2.0	92.4 ± 10.2	( 3 )	

## COUB001

Co-59(n,6p10n)Sc-44m			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	0.0703 ± 0.0111	( 8 )	

Co-59(n,6p8n)Sc-46m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	0.333 ± 0.053	( 5 )	

Co-59(n,6p7n)Sc-47			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	0.200 ± 0.020	( 6 )	

Co-59(n,4p8n)v-48			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	0.682 ± 0.074	( 8 )	

Co-59(n,3p6n)Cr-51			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	5.26 ± 0.49	( 9 )	

Co-59(n,2p6n)Mn-52m+g			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	1.78 ± 0.18	( 14 )	

Co-59(n,2p4n)Mn-54			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	11.5 ± 1.0	( 11 )	

Co-59(n,2p2n)Mn-56			cum
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	3.56 ± 0.49	( 2 )	

Co-59(n,p)Fe-59			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	2.96 ± 0.31	( 18 )	

Co-59(n,5n)Co-55			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	0.307 ± 0.053	( 5 )	

Co-59(n,4n)Co-56			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	3.42 ± 0.38	( 13 )	

Co-59(n,3n)Co-57			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	16.7 ± 1.4	( 22 )	

Co-59(n,2n)Co-58m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	37.8 ± 3.5	( 12 )	

Co-59(n,)Co-60m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
30.0 ± 2.0	628 ± 58	( 6 )	

## CUUB004

Cu-nat(n,8pxn)Sc-46m+g			ind
d ± Δd [mm]	R ± ΔR [10 <sup>-21</sup> s <sup>-1</sup> ]		
34.5 ± 2.5	0.0441 ± 0.0140	( 4 )	

Cu-nat(n,8pxn)Sc		
------------------	--	--

Fe-nat(n,5pxn)Sc-46m+g	ind	Cu-nat(n,4pxn)Mn-54	ind	Cu-nat(n,6pxn)v-48	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	0.836 ± 0.090 ( 14)	45.5 ± 2.5	2.50 ± 0.24 ( 9)	55.5 ± 2.5	0.0840 ± 0.0119 ( 7)
Fe-nat(n,5pxn)Sc-47	cum	Cu-nat(n,3pxn)Fe-59	cum	Cu-nat(n,5pxn)Cr-51	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	0.400 ± 0.034 ( 6)	45.5 ± 2.5	0.742 ± 0.089 ( 18)	55.5 ± 2.5	0.858 ± 0.103 ( 8)
Fe-nat(n,3pxn)v-48	cum	Cu-nat(n,2pxn)Co-55	cum	Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	2.51 ± 0.26 ( 18)	45.5 ± 2.5	0.152 ± 0.022 ( 4)	55.5 ± 2.5	0.342 ± 0.037 ( 21)
Fe-nat(n,2pxn)Cr-48	cum	Cu-nat(n,2pxn)Co-56	cum	Cu-nat(n,4pxn)Mn-54	ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	0.0625 ± 0.0093 ( 7)	45.5 ± 2.5	1.30 ± 0.16 ( 11)	55.5 ± 2.5	2.34 ± 0.20 ( 11)
Fe-nat(n,2pxn)Cr-51	cum	Cu-nat(n,2pxn)Co-57	cum	Cu-nat(n,3pxn)Fe-59	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	12.9 ± 1.1 ( 11)	45.5 ± 2.5	5.73 ± 0.49 ( 10)	55.5 ± 2.5	0.686 ± 0.076 ( 19)
Fe-nat(n,pxn)Mn-52m+g	cum	Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g	ind	Cu-nat(n,2pxn)Co-55	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	3.71 ± 0.35 ( 15)	45.5 ± 2.5	9.84 ± 0.92 ( 5)	55.5 ± 2.5	0.126 ± 0.022 ( 3)
Fe-nat(n,pxn)Mn-54	ind	Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g	ind	Cu-nat(n,2pxn)Co-56	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	24.1 ± 2.0 ( 10)	45.5 ± 2.5	5.94 ± 0.71 ( 6)	55.5 ± 2.5	1.23 ± 0.15 ( 18)
Fe-nat(n,pxn)Mn-56	cum	Cu-nat(n,pxn)Ni-57	cum	Cu-nat(n,2pxn)Co-57	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	4.08 ± 0.52 ( 3)	45.5 ± 2.5	0.128 ± 0.018 ( 6)	55.5 ± 2.5	5.44 ± 0.46 ( 12)
Fe-nat(n,xn)Fe-52m+g	ind	Cu-nat(n,xn)Cu-64	ind	Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g	ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	0.119 ± 0.025 ( 3)	45.5 ± 2.5	113 ± 11 ( 3)	55.5 ± 2.5	9.25 ± 0.86 ( 6)
Fe-nat(n,γ)Fe-59	ind	SIUB001		Cu-nat(n,2pxn)Co-60m+g	ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	Si-nat(n,10pxn)Be-7	ind	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	0.120 ± 0.024 ( 11)	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	55.5 ± 2.5	5.33 ± 0.63 ( 6)
Fe-nat(p,n)Co-56	ind	50.5 ± 2.5	0.124 ± 0.041 ( 2)	Cu-nat(n,pxn)Ni-57	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	Si-nat(n,3pxn)Na-22	cum	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
40.0 ± 3.0	0.156 ± 0.024 ( 8)	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	55.5 ± 2.5	0.127 ± 0.021 ( 10)
CUUB005		50.5 ± 2.5	2.49 ± 0.29 ( 3)	Cu-nat(n,xn)Cu-64	ind
Cu-nat(n,8pxn)Sc-46m+g	ind	Si-nat(n,3pxn)Na-24	cum	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	55.5 ± 2.5	116 ± 14 ( 3)
45.5 ± 2.5	0.0449 ± 0.0123 ( 5)	50.5 ± 2.5	1.96 ± 0.21 ( 3)	QUUB001	
Cu-nat(n,8pxn)Sc-47	cum	Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.		o-nat(n,4pxn)Be-7	ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	Si-nat(n,2pxn)Mg-28	cum	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
45.5 ± 2.5	0.0272 ± 0.0044 ( 5)	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	61.0 ± 3.0	0.563 ± 0.102 ( 4)
Cu-nat(n,6pxn)v-48	cum	50.5 ± 2.5	0.0548 ± 0.0128 ( 5)	Si-nat(n,3pxn)Na-22	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.		$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
45.5 ± 2.5	0.0842 ± 0.0117 ( 4)	CUUB006		61.0 ± 3.0	2.41 ± 0.33 ( 3)
Cu-nat(n,5pxn)Cr-51	cum	Cu-nat(n,8pxn)Sc-46m+g	ind	Si-nat(n,3pxn)Na-24	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
45.5 ± 2.5	0.932 ± 0.105 ( 9)	55.5 ± 2.5	0.0473 ± 0.0109 ( 5)	61.0 ± 3.0	2.00 ± 0.21 ( 3)
Cu-nat(n,4pxn)Mn-52m+g	cum	Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.		Die Messungen sind nicht für echte Koinzidenzen korrigiert.	
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]				
45.5 ± 2.5	0.372 ± 0.040 ( 21)				

## E.7 Experiment PSIN01

CUP1001		AGP1002		Ag-nat(n,xn)Ag-105m+g	ind
Cu-nat(n,3pxn)Fe-59	cum	Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m	cum	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	1.5 ± 0.5	23.3 ± 2.5 ( 27)
0.5 ± 0.5	0.253 ± 0.051 ( 9)	1.5 ± 0.5	1.33 ± 0.18 ( 4)	Ag-nat(n,xn)Ag-106m	ind
Cu-nat(n,2pxn)Co-57	cum	Ag-nat(n,2pxn)Rh-105m+g	cum	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	1.5 ± 0.5	14.1 ± 1.5 ( 46)
0.5 ± 0.5	1.25 ± 0.14 ( 5)	1.5 ± 0.5	0.605 ± 0.175 ( 2)		
Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g	ind				
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]				
0.5 ± 0.5	3.18 ± 0.31 ( 4)				

## E.8 Experiment PSIN02

AGP1001		Ag-nat(n,xn)Ag-106m	ind	CUP1002	
Ag-nat(n,2pxn)Rh-101m	cum	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	Cu-nat(n,2pxn)Co-57	cum
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]	0.5 ± 0.5	29.2 ± 2.9 ( 29)	$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
0.5 ± 0.5	1.44 ± 0.18 ( 5)			1.5 ± 0.5	1.69 ± 0.16 ( 5)
Ag-nat(n,xn)Ag-105m+g	ind			Cu-nat(n,2pxn)Co-58m+g	ind
$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]			$d \pm \Delta d$ [mm]	$R \pm \Delta R$ [ $10^{-21} \text{ s}^{-1}$ ]
0.5 ± 0.5	33.9 ± 3.5 ( 17)			1.5 ± 0.5	3.98 ± 0.40 ( 4)



## Danksagung

Mein besonderer Dank gilt meinem Doktorvater Herrn Prof. Dr. R. Michel zunächst für die Möglichkeit der Durchführung dieser Arbeit selbst, vor allem aber für das immer offene Ohr und die stete Bereitschaft zur Diskussion sowie für die eingeräumten Freiräume bei der Arbeit.

Herrn Dr. M. Gloris danke ich für das stete Interesse an der fachlichen Diskussion und für die unkomplizierte Unterstützung bei vielen Computerfragen. Herrn Dr. I. Leya danke ich für die gute Zusammenarbeit.

Allen hier nicht ausdrücklich erwähnten Mitarbeitern des ZSR danke ich, daß sie durch die offene und zwanglose Atmosphäre im Institut zur Freude an der Arbeit beigetragen haben.

Allen Mitarbeitern der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln unter der Leitung von Herrn Dr. U. Herpers gebührt mein Dank für die gute und unkomplizierte Zusammenarbeit bei der Durchführung der Experimente und Messungen.

Allen Mitarbeitern des PARTY-Projektes danke ich, daß sie sich so engagiert eingebracht und damit zum Gelingen beigetragen haben. Insbesondere danke ich Herrn A. Prokofiev und Herrn Dr. A. Smirnov vom Khlopin-Radium-Institut, St. Petersburg (Rußland), für die gute Zusammenarbeit. Außerdem danke ich Herrn P. Malmborg vom TSL dafür, daß er jeden Aufenthalt in Uppsala zu etwas Besonderem gemacht hat.

Für die gute Zusammenarbeit im Rahmen der Bestrahlungen am UCL danke ich der Arbeitsgruppe unter der Leitung von Herrn Dr. H. Schuhmacher von der PTB, Braunschweig, sowie Herrn Prof. Dr. J.P. Meulders vom UCL.

Herrn Dr. U.J. Schrewe von der PTB danke ich für die Bereitstellung experimenteller Ergebnisse.

Für die Bereitstellung der Strahlzeiten an den Beschleunigern am The Svedberg Laboratorium, Uppsala (Schweden), sowie an der Université Catholique de Louvain, Louvain-la-Neuve (Belgien), und der Kooperation bei der Durchführung der Bestrahlungsexperimente geht mein Dank an die Verantwortlichen sowie das Beschleunigerpersonal dieser Einrichtungen.

Der Werkstatt des ZSR am Standort Herrenhausen danke ich für die Hilfe bei der Vorbereitung von Bestrahlungsexperimenten.

Für die rat- und tatkräftige Unterstützung während meines Studiums danke ich meiner Familie, insbesondere meinen Eltern.

# Lebenslauf

## Persönliche Angaben

Name: Sonja Neumann  
Geburtsdatum: 20.01.1970  
Geburtsort: Berlin  
Familienstand: ledig  
Anschrift: In der Steinbreite 89  
D-30455 Hannover

## Ausbildung - Arbeitsverhältnisse

1976 -	1980	Grundschule Kirchdorf
1980 -	1982	Orientierungsstufe Spalterhals Barsinghausen
1982 -	1989	Ganztagsgymnasium Barsinghausen
	5/89	Abitur
10/89 -	01/95	Studium der Physik an der Universität Hannover
	01/95	Diplom in Physik Diplomarbeit: „Protonen-induzierte Reaktionen an den Elementen Strontium, Yttrium und Niob und die Produktion kosmogener Krypton-Isotope“
03/95 -	12/98	Wissenschaftliche Mitarbeiterin der Universität Hannover am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie
01/99 -	heute	Wissenschaftliche Mitarbeiterin an der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt, Braunschweig