

Protonen-induzierte Erzeugung  
radioaktiver Restkerne in Blei und Bismut  
bei Energien bis 71 MeV

**I n a u g u r a l - D i s s e r t a t i o n**

zur

Erlangung des Doktorgrades  
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der Universität zu Köln

vorgelegt von

Dipl.-Phys. Jochen Kuhnhen

aus Kassel

Druck: Grafische Betriebe, Forschungszentrum Jülich GmbH

2001

Berichterstatter: Prof. Dr. Dr. h.c. S. M. Qaim

Prof. Dr. H. Paetz gen. Schieck

Tag der mündlichen Prüfung: 26. Juni 2001

# Kurzzusammenfassung

Es wurden integrale Dünntarget Wirkungsquerschnitte für die Erzeugung von radioaktiven Restkernen in Protonen-induzierten Reaktionen an Blei und Bismut gemessen. Dabei wurde unter Verwendung der „Stacked-Foil-Technique“ ein Energiebereich zwischen 9 und 71 MeV abgedeckt.

Mehrere Bestrahlungsexperimente mit Einschussenergien von 45 und 72 MeV wurden am Phillips Injector I Cyclotron des Paul-Scherrer-Instituts in der Schweiz durchgeführt. Die Aktivitäten der produzierten Restkerne wurden zerstörungsfrei mittels hochauflösender  $\gamma$ -Spektrometrie bestimmt. Dabei wurde ein neu entwickeltes Auswertungssystem eingesetzt und als zuverlässig bestätigt.

Mehr als 660 Wirkungsquerschnitte für 39 Reaktionen von den Schwellenenergien bis zu 71 MeV wurden ermittelt. Die Ergebnisse aus 6 unabhängigen Bestrahlungen ergaben konsistente Anregungsfunktionen. Bei der Auswertung wurden verschiedene Monitoranregungsfunktionen der Reaktionen  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$  und  $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{65}\text{Zn}$  verglichen.

Die Halbwertszeit des  $^{205}\text{Bi}$  wurde neu bestimmt. Der ermittelte Wert von  $(14.87 \pm 0.12)$  Tagen weicht um fast 3% vom bisherigen Literaturwert ab.

Die experimentellen Ergebnisse wurden mit theoretischen Berechnungen des Precompound-Hybrid Modells ALICE-IPPE für mittlere Energien verglichen. Die Übereinstimmungen waren im Allgemeinen für weniger als 10 emittierte Nukleonen über den gesamten Energiebereich befriedigend. Die Einbeziehung der Komplexeilchenemission während der PE-Phase verbesserte die Ergebnisse erheblich. Größere Abweichungen sind jedoch für targetferne Produkte festzustellen.



# Abstract

Integral thin target production cross sections were measured for the formation of residual radionuclides by proton-induced reactions on lead and bismuth over the proton energy range from 9 to 71 MeV using the stacked foil technique.

Several irradiation experiments with incident proton energies of 45 and 72 MeV were performed at the Phillips Injector I Cyclotron of the Paul-Scherrer-Institut, Switzerland. The product activity was measured non-destructively via high resolution  $\gamma$ -ray spectrometry. An improved system for analysis of the complex  $\gamma$ -ray spectra was developed and has been proved to be reliable.

More than 660 cross sections for 39 reactions from threshold energies up to 71 MeV were determined. The results from 6 independent irradiations with partly overlapping energy ranges yielded consistent excitation functions. Different data sets for the cross sections of the used monitor reactions  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$  and  $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{65}\text{Zn}$  have been compared.

A new value for the half-life of  $^{205}\text{Bi}$  has been determined. The obtained result of  $(14.87 \pm 0.12)$  days differs nearly 3% from the formerly known value of 15.31 days.

Experimental results were compared with theoretical data obtained by the modified precompound hybrid nuclear model code ALICE-IPPE (1998) for intermediate energies. The agreement was found to be generally satisfactory for less than 10 emitted nucleons over the whole covered energy range. The inclusion of pre-equilibrium emission of complex particles has improved the theoretical results. Large deviations are, however, observed for product nuclei rather away from the target nucleus.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Aufgabenstellung</b>	<b>7</b>
<b>3. Grundlagen und Beschreibung von Kernreaktionen</b>	<b>9</b>
3.1. Eigenschaften und Nomenklatur von Kernreaktionen . . . . .	9
3.2. Theoretische Modellierung von Kernreaktionen . . . . .	11
3.3. Bestimmung von Wirkungsquerschnitten . . . . .	12
<b>4. Experimentelle Methoden</b>	<b>17</b>
4.1. Durchführung der Bestrahlungsexperimente . . . . .	17
4.1.1. Auswahl und Vorbereitung der Proben . . . . .	17
4.1.2. Berechnung der Energiedegradierung des Protonenstrahls . . .	19
4.1.3. Durchführung der Bestrahlungen am Paul-Scherrer-Institut . .	20
4.2. Gammaspektrometrie . . . . .	23
4.2.1. Allgemeines . . . . .	23
4.2.2. Kalibration der Detektoren . . . . .	25
4.2.3. Bestimmung der Peakparameter . . . . .	31
4.2.4. Identifizierung der Aktivierungsprodukte . . . . .	34

4.2.5.	Berechnung der Aktivitäten und Ableitung der Wirkungsquerschnitte . . . . .	36
4.3.	Bestimmung der Flussdichte . . . . .	38
4.3.1.	Diskussion der verwendeten Monitorwirkungsquerschnitte . . . . .	39
4.3.2.	Energieabhängigkeit der Monitorwirkungsquerschnitte . . . . .	41
4.3.3.	Verlauf der Protonenflussdichte innerhalb der Stacks . . . . .	42
4.4.	Fehlerbetrachtung . . . . .	43
4.4.1.	Unsicherheiten bei der Probenpräparation . . . . .	43
4.4.2.	Unsicherheiten der Gammaskopimetrie . . . . .	44
4.4.3.	Unsicherheiten der Flussbestimmung . . . . .	48
4.4.4.	Unsicherheiten der abschließenden Berechnung . . . . .	48
4.4.5.	Unsicherheiten der Protonenenergie . . . . .	49
4.5.	Qualitätssicherung . . . . .	49
4.5.1.	Beispiel zur Qualitätssicherung . . . . .	52
4.5.2.	Fazit zur Qualitätssicherung . . . . .	54
<b>5.</b>	<b>Experimentelle Ergebnisse</b>	<b>55</b>
5.1.	Bestimmung der Halbwertszeit von $^{205}\text{Bi}$ . . . . .	56
5.1.1.	Hinweise auf eine fehlerhafte Halbwertszeit . . . . .	56
5.1.2.	Literaturdaten . . . . .	56
5.1.3.	Verfahren zur Bestimmung der Halbwertszeit . . . . .	56
5.1.4.	Ergebnis der Neubestimmung . . . . .	57
5.2.	Bestimmung der Flussdichten . . . . .	58
5.2.1.	Betrachtungen zur Einschussenergie . . . . .	58
5.2.2.	Einfluss der Monitorwirkungsquerschnitte . . . . .	61

5.2.3.	Die Flussdichten von Zuer05 und Zuer06 . . . . .	63
5.2.4.	Die Flussdichte von Zuer0A . . . . .	64
5.2.5.	Die Flussdichte von Zuer0B . . . . .	64
5.2.6.	Die Flussdichte von Zuer0F und Zuer0G . . . . .	64
5.3.	Ergebnisse aus dem Targetelement Blei . . . . .	67
5.3.1.	Systematik der Restkernverteilung . . . . .	68
5.3.2.	$(p,xn)$ Reaktionen . . . . .	69
5.3.3.	$(p,pxn)$ Reaktionen . . . . .	77
5.3.4.	$(p,2pxn)$ Reaktionen . . . . .	80
5.3.5.	$(p,3pxn)$ Reaktionen . . . . .	81
5.3.6.	Spaltungsreaktionen . . . . .	82
5.4.	Ergebnisse aus dem Targetelement Bismut . . . . .	85
5.4.1.	Anmerkungen zu den Experimenten Zuer06 und Zuer0B . . . . .	85
5.4.2.	$(p,xn)$ Reaktionen . . . . .	85
5.4.3.	$(p,pxn)$ Reaktionen . . . . .	87
5.4.4.	$(p,2pxn)$ Reaktionen . . . . .	89
5.4.5.	$(p,3pxn)$ Reaktionen . . . . .	90
5.4.6.	Spaltungsreaktionen . . . . .	91
5.5.	Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse und Ausblick . . . . .	93
<b>6.</b>	<b>Vergleich der experimentellen und theoretischen Ergebnisse</b>	<b>97</b>
6.1.	Beschreibung von ALICE-IPPE . . . . .	98
6.2.	Die Parameter des ALICE-IPPE-Modells . . . . .	99
6.3.	Durchführung der Berechnungen . . . . .	100
6.4.	Analyse der Massenberechnungsart . . . . .	101

6.4.1. (p,xn)-Reaktionen . . . . .	101
6.4.2. (p,pxn)-Reaktionen . . . . .	105
6.4.3. (p,2pxn)-Reaktionen . . . . .	108
6.4.4. (p,3pxn)-Reaktionen . . . . .	108
6.5. Einfluss der Niveaudichten . . . . .	111
6.6. Bewertung der Modellrechnungen . . . . .	114
<b>7. Zusammenfassung</b>	<b>115</b>
<b>A. Wirkungsquerschnitte aus Blei und Bismut</b>	<b>119</b>
A.1. Vorbemerkungen . . . . .	119
A.2. Wirkungsquerschnitte aus Blei . . . . .	120
A.3. Wirkungsquerschnitte aus Bismut . . . . .	126
<b>B. Ausgewertete Proben</b>	<b>131</b>
B.1. Ausgewertete Bismutproben . . . . .	131
B.2. Ausgewertete Bleiproben . . . . .	132
<b>C. Übersicht der bestimmten Flussdichten</b>	<b>135</b>
<b>D. Verwendete Monitorwirkungsquerschnitte</b>	<b>137</b>
D.1. Monitorwirkungsquerschnitte der Reaktion $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$ . . . . .	137
D.2. Monitorwirkungsquerschnitte der Reaktion $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{65}\text{Zn}$ . . . . .	138
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>139</b>

# Abbildungsverzeichnis

1.1. Schematische Darstellung des ADEA-Konzeptes . . . . .	3
3.1. Vereinfachte Darstellung des Ablaufs einer Kernreaktion . . . . .	11
4.1. Darstellung eines PSI-Stackhalters . . . . .	22
4.2. Verlauf der Strahlintensität für Zuer0F . . . . .	23
4.3. Bestimmung der Halbwertsbreitenfunktion . . . . .	26
4.4. Extrapolation von Efficiencies . . . . .	29
4.5. Bildschirmausgabe des Auswertungsprogramms . . . . .	36
4.6. Selbstabsorption von $\gamma$ -Strahlung in einer Bismutprobe . . . . .	38
4.7. Monitorwirkungsquerschnitte für die Reaktion $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$ . . . . .	40
4.8. Monitorwirkungsquerschnitte für die Reaktion $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{65}\text{Zn}$ . . . . .	41
5.1. Bestimmung der Halbwertszeit von $^{205}\text{Bi}$ . . . . .	58
5.2. Variation der anfänglichen Protonenenergie für Zuer0B . . . . .	59
5.3. Variation der Einschussenergien für Zuer0F und Zuer0G . . . . .	61
5.4. Vergleich der Flussdichten für Zuer0F und Zuer0G . . . . .	62
5.5. Flussdichten für Zuer05 und Zuer06 . . . . .	63
5.6. Flussdichten für Zuer0A . . . . .	65
5.7. Flussdichten für Zuer0B . . . . .	66
5.8. Flussdichten für Zuer0F und Zuer0G . . . . .	67
5.9. Systematik der Restkernverteilung im Blei . . . . .	69
5.10. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{207}\text{Bi}$ . . . . .	70

5.11. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{206}\text{Bi}$ . . . . .	71
5.12. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{205}\text{Bi}$ . . . . .	73
5.13. Vergleich der Werte zwischen dieser Arbeit und [LSCN <sup>+</sup> 87] . . . . .	74
5.14. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{204}\text{Bi}$ . . . . .	76
5.15. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{203}\text{Bi}$ . . . . .	77
5.16. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{203}\text{Pb}$ . . . . .	78
5.17. Experimentelle Anregungsfunktionen der Reaktionen $^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{201}\text{Pb}$ und $^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{200}\text{Pb}$ . . . . .	79
5.18. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,2pxn)^{200}\text{Tl}$ . . . . .	80
5.19. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,3pxn)^{203}\text{Hg}$ . . . . .	81
5.20. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,f)^{103}\text{Ru}$ . . . . .	83
5.21. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{nat}\text{Pb}(p,f)^{95}\text{Zr}$ . . . . .	84
5.22. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{209}\text{Bi}(p,3n)^{207}\text{Po}$ . . . . .	86
5.23. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{209}\text{Bi}(p,4n)^{206}\text{Po}$ . . . . .	87
5.24. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{209}\text{Bi}(p,p2n)^{207}\text{Bi}$ . . . . .	88
5.25. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{209}\text{Bi}(p,p4n)^{205}\text{Bi}$ . . . . .	89
5.26. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{209}\text{Bi}(p,2p5n)^{203}\text{Pb}$ . . . . .	90
5.27. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{209}\text{Bi}(p,3p5n)^{202}\text{Tl}$ . . . . .	91
5.28. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{209}\text{Bi}(p,f)^{103}\text{Ru}$ . . . . .	92
5.29. Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{209}\text{Bi}(p,f)^{95}\text{Zr}$ . . . . .	93
6.1. Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion von $^{209}\text{Bi}(p,xn)^{206/207}\text{Po}$	102
6.2. Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion von $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{206/207}\text{Bi}$	103
6.3. Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion von $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{204/205}\text{Bi}$	104
6.4. Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion von $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{203}\text{Bi}$ .	106
6.5. Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion von $^{209}\text{Bi}(p,p4n)^{205}\text{Bi}$ und $^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{201}\text{Pb}$ . . . . .	107
6.6. Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion von $^{nat}\text{Pb}(p,2pxn)^{201}\text{Tl}$ und $^{209}\text{Bi}(p,2p5n)^{203}\text{Pb}$ . . . . .	109
6.7. Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion von $^{nat}\text{Pb}(p,3pxn)^{203}\text{Hg}$	110
6.8. Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion von $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{206/207}\text{Bi}$	112
6.9. Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion von $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{204/205}\text{Bi}$	113

# Tabellenverzeichnis

4.1. Eigenschaften der ausgewerteten Metallfolien. . . . .	17
4.2. Isotopenzusammensetzung der verwendeten Bleifolien. . . . .	18
4.3. Übersicht der durchgeführten Bestrahlungsexperimente. . . . .	21
4.4. Technische Daten der verwendeten Detektoren. . . . .	24
4.5. Übersicht der Qualitätskontrollen. . . . .	51



# 1. Einleitung

Natürliche Radionuklide umgeben den Menschen seit jeher. Erst vor 105 Jahren entdeckte H. Becquerel diese natürliche Radioaktivität und bereits kurze Zeit später erkannte man die enormen Möglichkeiten, die diese Eigenschaft einiger Stoffe bietet. Zunächst beschränkten sich die Anwendungen auf die natürlich vorkommenden Radionuklide und deren Zerfallsprodukte. Die künstliche Herstellung von Radionukliden (erstmalig durch J. F. Joliot und I. Joliot-Curie 1934) erweiterte jedoch die Anwendbarkeit deren Eigenschaften auf praktisch alle Disziplinen der Naturwissenschaft und Technik.

Die zugrunde liegenden nuklearen Daten, welche die Produktion und den Zerfall der Radionuklide beschreiben, sind essentiell für alle diese Anwendungen. Die Zerfallsdaten, welche die Halbwertszeiten und die den Zerfall begleitende Strahlung beschreiben, sind seit längerer Zeit für alle verbreiteten Applikationen mit ausreichender Genauigkeit bekannt. Im Gegensatz dazu besteht für die Produktion von Radionukliden mit dem Aufkommen immer neuer Zielsetzungen ein großes Defizit an nuklearen Daten. Unter diesen nehmen Wirkungsquerschnitte zur Produktion von Restkernen eine herausgehobene Stellung ein. Deren Größe bestimmt die Menge und Anteile der produzierten Radionuklide, was neben den Daten der spektralen Verteilung der Ejektile von großem Interesse ist. Darüber hinaus liefern diese nuklearen Daten auch Erkenntnisse zur Überprüfung und Verbesserung der theoretischen Modellierung von Kernreaktionen.

Drei Anwendungen haben in den letzten Jahren die Forschung an der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln in Kooperation mit dem Institut für Nuklearchemie am Forschungszentrum Jülich und dem Zentrum für Strahlenschutz und

Radioökologie in Hannover (ZSR) über nukleare Daten zur Produktion von Radionukliden geprägt: der Einsatz in der Medizin als Diagnostika und Therapeutika [Qai01a, Qai01b, Qai01c], die Anwendungen in der Geo- und Kosmochemie [MLB96, Mic99] und in den letzten Jahren die Konzeption einer beschleunigergestützten Technologie zur Anwendung in der Energieerzeugung und Transmutation. Die vorliegende Arbeit ist ein Teil der Untersuchungen zur Realisation dieser ehrgeizigen Projekte, welche im Folgenden näher vorgestellt werden.

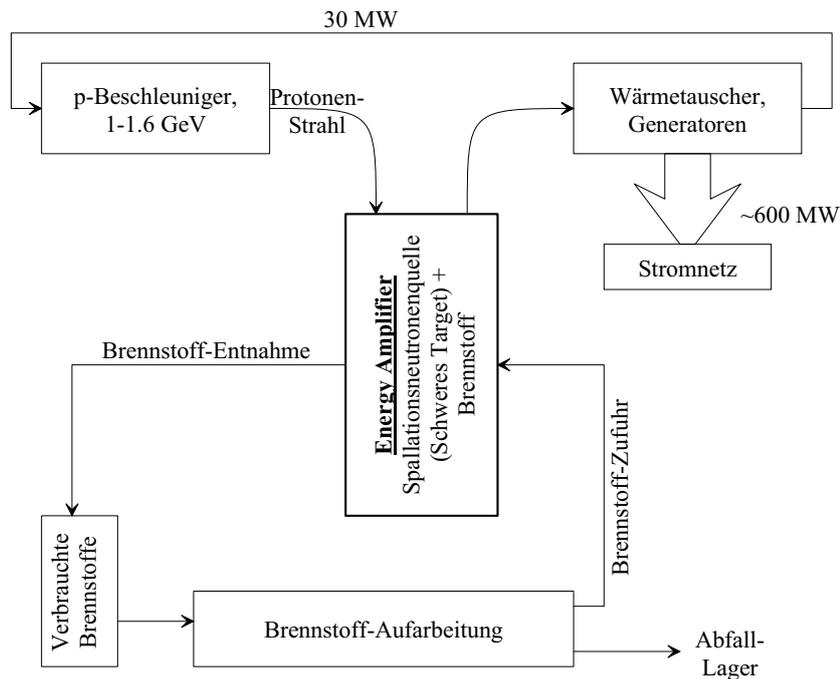
In einem Artikel des SPIEGEL<sup>1</sup> bekam ein breiteres Publikum auf Basis dieser Überlegungen einen „katastrophensicheren Reaktor“ präsentiert, der „den Energiebedarf der Menschheit auf 200000 Jahre“ sichert. Anhand dieser drastischen Darstellung manifestiert sich das große Interesse, das dem gesamten Komplex der Energieversorgung und dessen Folgen gilt. Mehrere Themen bestimmen die öffentliche Meinung zu diesem Thema: Der Reaktorunfall von Tschernobyl, der als eine unmittelbare Bedrohung empfunden wurde, die Endlager-Problematik für abgebrannte Kernbrennstoffe, der militärische Aspekt der Kerntechnologie und der massive Anstieg der CO<sub>2</sub>-Emissionen als Folge der Nutzung fossiler Brennstoffe. Diese Problemfelder versuchen die Konzepte der beschleunigergestützten Technologie zur Energieerzeugung („Accelerator Driven Energy Amplifier“, ADEA [CKR<sup>+</sup>93]) und Transmutation von radioaktiven Abfällen („Accelerator Driven Transmutation of Waste“, ADTW [BAL<sup>+</sup>92]) zu überwinden.

Der Entwurf von Carminati et al. [CKR<sup>+</sup>93] beruht auf einer unterkritischen Anordnung, in der durch eine intensive, externe Neutronenquelle in einem Thorium-Uran-Brüter eine Energieerzeugung stattfinden kann. Dabei wird aus dem natürlich vorkommenden <sup>232</sup>Th das spaltbare <sup>233</sup>U erbrütet. Laut Rubbia [RRB<sup>+</sup>95] zeichnen folgende Vorteile dieses Konzept aus:

- ◇ Hohe inhärente Sicherheit durch unterkritische Anordnung
- ◇ Minimale Produktion von extrem langlebigem Abfall
- ◇ Keine militärische Nutzung möglich

---

<sup>1</sup>DER SPIEGEL, 22/1998, Seite 184: „Atomenergie: Trommelfeuer aufs Blei“, <http://www.spiegel.de/spiegel/0,1518,6604,00.html>



**Abbildung 1.1.:** Schematische Darstellung des „Energy Amplifier“-Konzeptes nach [RRB<sup>+</sup>95, Rev01].

- ◇ Effiziente Nutzung des langfristig verfügbaren  $^{232}\text{Th}$  als Brennstoff
- ◇ Geringere Kosten bei höheren Temperaturen als bei konventionellen Anlagen

Ein Teil der erzeugten Energie wird zum Betrieb des Beschleunigers verwandt, der größte Teil jedoch kann anderweitig Verwendung finden [SSB01]. Abbildung 1.1 zeigt eine schematische Darstellung eines solchen Systems [RRB<sup>+</sup>95, Rev01].

Der zweite Vorschlag von Bowman et al. [BAL<sup>+</sup>92] geht in den technischen Anforderungen noch weiter. Hier werden in einem ähnlichen Aufbau höchste Neutronenflüsse angestrebt, die nach einer nuklearchemischen Aufarbeitung von hochaktiven und langlebigen Abfällen, sowohl aus zivilen wie auch militärischen kerntechnischen Anlagen, eine Umwandlung in kurzlebige oder stabile Nuklide möglich machen. Da beide Ansätze ähnliche Probleme beinhalten, zielen jüngste Experimente am CERN auf ein Hybrid-System, in dem die Energieerzeugung und Abfallvernichtung vereinigt werden sollen [Rev01].

Beiden Projekten gemeinsam ist als zentrale Komponente eine neuartige Neutronenquelle, bei der über einen intensiven Protonenstrahl in einem schweren Target wie Blei oder Bismut über Spallationsreaktionen hohe sekundäre Neutronenflüsse realisiert werden. Als Folge eines primären Protons einer Energie zwischen 1 und 2 GeV werden beispielsweise in einem Bleitarget von 60 cm Tiefe und 20 cm Durchmesser zwischen 20 und 25 sekundäre Neutronen erzeugt [DSS96]. Der größte Anteil der Spallationsneutronen wird isotrop emittiert und besitzt Energien von bis zu 10 MeV [MTC<sup>+</sup>99]. Die Spektren der emittierten Teilchen und deren Winkelabhängigkeit müssen bekannt sein, um die sekundären Reaktionen im Target beschreiben zu können. Bei einem projektierten Strahlstrom im mA-Bereich lassen sich in einer solchen Anlage Flüsse bis zu  $10^{17}$  Neutronen pro Sekunde realisieren. Auch für andere Bereiche der Forschung und Entwicklung eröffnen Spallationsneutronenquellen aufgrund ihrer Eigenschaften völlig neue Perspektiven und es befinden sich bereits mehrere Anlagen in Betrieb oder in Planung [Bau98, SNQ, ISS, PNS, ESS, SNS].

Im Zusammenhang mit diesen Überlegungen tritt ein großer Bedarf an nuklearen Daten auf [KDB98, NEA98], über welche die primären und sekundären Reaktionskaskaden modelliert und die Mengen der produzierten Radionuklide abgeschätzt werden. Eine prospektive Modellierung des zu erwartenden Inventars an Radionukliden nur aufgrund von theoretischen Berechnungen aber ist mit den derzeitigen Mitteln nicht möglich [CRDO98, MBB<sup>+</sup>97]. Zur Berechnung der Abschirmungen werden außerdem Daten zu prompten und verzögerten  $\gamma$ -Quanten benötigt.

Die experimentelle Bestimmung der benötigten nuklearen Daten ist daher bislang unumgänglich, nicht zuletzt zur Validierung der theoretischen Modellrechnungen. In den letzten Jahren wurden dazu umfangreiche Messungen durchgeführt, die einen Energiebereich von etwa 70 MeV bis zu 2.6 GeV abdeckten [MBB<sup>+</sup>97, GNL<sup>+</sup>98, PGN<sup>+</sup>99, KHG<sup>+</sup>00, GMS<sup>+</sup>01, TSB<sup>+</sup>01]. Für Protonenenergien unterhalb von 70 MeV liegen bislang nur wenige Daten vor und sie stammen zumeist aus älteren Messungen. Für eine vollständige Beschreibung der Kernreaktionen, die im Reaktor stattfinden, sind lückenlose Anregungsfunktionen von den Schwellenenergien bis zu den maximal projektierten Energien von etwa 1.6 GeV nötig.

Neben diesen aktuellen Anwendungen wird Blei schon seit längerer Zeit als mögliches Targetelement für die Produktion medizinisch relevanter Radionuklide wie  $^{201}\text{Tl}$  in Betracht gezogen. Die Abschätzung der Strahlenexposition des Personals an Be-

schleunigern durch die Aktivierung von Kollimatoren und anderen Bauteilen stellt einen weiteren Bereich der Anwendbarkeit der in dieser Arbeit bestimmten Daten dar.



## 2. Aufgabenstellung

Mit dem Aufkommen der Konzepte für beschleunigergestützte Systeme zur Energiegewinnung und Vernichtung von langlebigen radioaktiven Abfällen gewannen integrale Wirkungsquerschnitte zur Protonen-induzierten Produktion von radioaktiven Restkernen in den projektierten Targetelementen Blei und Bismut große Relevanz. Dabei bestehen für die Anregungsfunktionen von den Schwellenenergien bis zu etwa 70 MeV bisher große Defizite, da sie bisher experimentell größtenteils noch nicht untersucht wurden.

Mit der vorliegenden Arbeit sollte dieser Mangel behoben werden. Dabei sollte ein kompletter Datensatz an Wirkungsquerschnitten für die Targetelemente Blei und Bismut erstellt werden. Dazu sollten Dünntarget-Bestrahlungsexperimente am Paul-Scherrer-Institut (Schweiz) mit Protonenenergien zwischen 9 und 71 MeV geplant, durchgeführt und ausgewertet werden.

Die Messung der bestrahlten Proben sollte mittels hochauflösender  $\gamma$ -Spektrometrie erfolgen. Für die Berechnung der Wirkungsquerschnitte aus den aufgenommenen  $\gamma$ -Spektren sollte ein Auswertungssystem entwickelt werden, welches in Erweiterung der bestehenden Programme eine qualitativ hochwertige Analyse garantiert.

Die experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte sollten mit den Ergebnissen von theoretischen Modellrechnungen des Programms ALICE-IPPE, welches auf dem Exciton-Hybridmodell basiert, verglichen werden und die Zuverlässigkeit dieser Berechnungen diskutiert werden.

## 2. AUFGABENSTELLUNG

---

# 3. Grundlagen und Beschreibung von Kernreaktionen

## 3.1. Eigenschaften und Nomenklatur von Kernreaktionen

Kernreaktionen sind Prozesse, bei denen durch Einwirkung von Elementarteilchen oder  $\gamma$ -Strahlung eine Umwandlung des getroffenen Atomkerns stattfindet. Die allgemeine Formulierung einer solchen Kernreaktion lautet:



Hier bezeichnet  $A$  den getroffenen Kern (Target) welcher durch das Projektil  $x$  in den Kern  $B$  umgewandelt wird (Produkt), wobei ein oder mehrere Ejektile  $y$  abgeben werden und  $\Delta E$  die Energiebilanz der Reaktion ist. Üblicherweise wird für eine solche Reaktion die Kurzform



verwendet, wobei auf die Angabe der Energiedifferenz verzichtet wird. Diese Energiedifferenz ergibt sich aus der Massendifferenz der Reaktionspartner:

$$\Delta E = (m_A + m_x - m_B - m_y) c^2 \quad (3.3)$$

Unter Berücksichtigung der Impulserhaltung ist demzufolge eine minimale Energie des Projektils  $x$  nötig, um eine Reaktion stattfinden zu lassen, welche als Schwellenenergie bezeichnet wird und sich nach

$$E_s = -\Delta E \left( 1 + \frac{m_x}{m_A} \right) \quad (3.4)$$

berechnen lässt. Sind für eine Reaktion nur das Target  $A$ , das Projektil  $x$  und das Produkt  $B$  bekannt, so müssen alle möglichen Reaktionswege (also alle möglichen Kombinationen von Ejektilen) berücksichtigt werden, um die minimale Schwellenenergie zu finden. Bei denen in dieser Arbeit angegebenen Schwellenenergien wurden Ejektile bis zur Massenzahl 4 berücksichtigt, da die Emission von schwereren Komplexeilchen relativ selten ist [Qai95]. Zu dieser Schwellenenergie muss bei positiv geladenen Projektilen auch die Coulomb-Schwelle berücksichtigt werden, welche näherungsweise durch

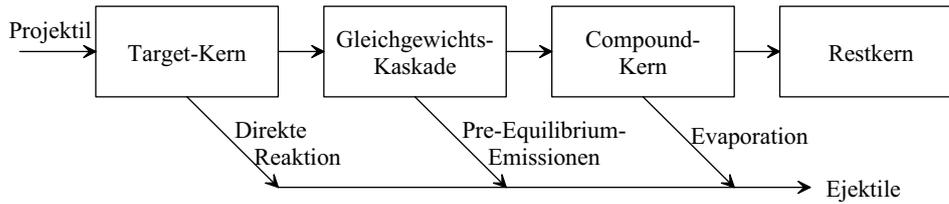
$$E_c = \frac{Z_A Z_x e^2}{4\pi\epsilon_0 r} \approx \frac{Z_A Z_x}{A_A^{1/3} + A_x^{1/3}} \cdot 1.0285 \text{MeV} \quad (3.5)$$

gegeben ist. Dabei wird für die Näherung eine konstante Kerndichte angenommen. Aufgrund des Tunneleffekts können auch solche Teilchen in den Targetkern eindringen, für welche die kinetische Energie unterhalb der Summe  $E_s + E_c$  liegt.

Die Wahrscheinlichkeit der Reaktion  $A(x, y)B$  wird durch den Wirkungsquerschnitt  $\sigma$  beschrieben, seine Einheit entspricht einer Fläche. Aus historischen Gründen wird der Wirkungsquerschnitt in der Einheit Barn ( $1 \text{ Barn} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-28} \text{ m}^2$ ) gemessen.

Der Wirkungsquerschnitt einer Reaktion kann prinzipiell auf zwei Arten bestimmt werden: entweder werden die entstehenden Produkte oder die emittierten Teilchen im Ausgangskanal der Reaktion gemessen. Bei der Messung der emittierten Teilchen kann über Teleskop-Detektoren die Energie- und Winkelverteilung bestimmt werden, im Falle emittierter radioaktiver Komplexeilchen wie  ${}^7\text{Be}$  erfordert eine  $\gamma$ -spektrometrische Messung meist eine aufwändige radiochemische Trennung der Targets [NRQS94, Qai95].

Im ersten Fall ist keine Diskriminierung des Reaktionsweges möglich, alle Zwischenschritte bleiben unbekannt und nur das Endergebnis wird beobachtet. Für die erste Technik spricht die im Allgemeinen bessere Messbarkeit der entstandenen Produkte, insbesondere wenn diese radioaktiv sind. In diesem Fall ist die Bestimmung der Produkte über die beim Zerfall auftretenden Strahlung möglich. In dieser Arbeit wird die beim Übergang eines angeregten Kerns emittierte  $\gamma$ -Strahlung gemessen. Sie ist wegen der charakteristischen Kernniveaus spezifisch für ein bestimmtes Nuklid und erlaubt damit die Identifikation des zerfallenen Kerns. Über die bekannten Zerfallseigenschaften der radioaktiven Kerne kann so auf die Menge der entstanden Produktnuklide geschlossen werden.



**Abbildung 3.1.:** Vereinfachte Darstellung des Ablaufs einer Kernreaktion mit den Beiträgen aus direkten, Preequilibrium- und Compound-Reaktionen [HGG97].

## 3.2. Theoretische Modellierung von Kernreaktionen

Die theoretische Beschreibung von Kernreaktionen ist bisher nur unvollständig möglich. Man fasst Kernreaktionen bei der theoretischen Berechnung von Wirkungsquerschnitten daher als eine schematisierte Abfolge mehrerer Stadien auf. Diese sind in Abbildung 3.1 angedeutet und werden im Folgenden erläutert.

*Direkte Reaktionen* finden in etwa der Zeitspanne statt, die das Projektil benötigt um den Targetkern zu durchdringen ( $\sim 10^{-22}$  s). Während dieser Zeit finden überwiegend Wechselwirkungen mit einzelnen Nukleonen statt, wobei eine mögliche Freisetzung von Ejektile unmittelbar im Anschluss erfolgt. Dabei werden bei Wechselwirkung mit einzelnen Nukleonen diskrete Niveaus des Restkerns angeregt, Interaktionen mit mehreren Nukleonen hingegen regen kollektive Zustände an. Ein typisches Merkmal von direkten Reaktionen sind anisotrope Ejektilverteilungen. Beispiele direkter Reaktionen mit Änderung der Massenzahl sind „Pick-Up“- , „Stripping“- oder „Knock-Out“-Reaktionen, bei denen wenige Nukleonen des Projektils an den Kern abgegeben werden oder das Projektil wenige Nukleonen des Kerns aufnimmt bzw. entfernt.

Verbleibt das Projektil länger im Kern, so bildet sich ein *Compound-Kern*, in dem sich die Energie des Projektils statistisch auf alle Nukleonen verteilt [Boh36]. Die dafür benötigte Zeit ist in Abhängigkeit von der Energie des Projektils  $10^3 - 10^7$  mal größer als die Dauer der direkten Reaktionen. Die Zeit bis zum Erreichen des statistischen Gleichgewichts bezeichnet man als Pre-Equilibrium (PE). Besonders während der frühen Phase dieser Umordnungsphase können *PE-Emissionen* (einzelne Nukleonen, leichte Komplettelchen) auftreten.

Die Abregung des Compound-Kerns erfolgt in statistisch beschreibbaren Prozessen, bei denen einzelne Nukleonen oder komplexere Cluster genug Energie besitzen, um durch Evaporation das Kernpotential zu verlassen [WE40]. Die Abregung kann im Falle geringerer übertragender Energie auch über die Emission von  $\gamma$ -Quanten erfolgen. Für diese Evaporation ist die Reaktion, die zur Bildung des Compound-Kerns geführt hat, unerheblich.

Durch das Projektil kann auch die Spaltung eines Kerns eingeleitet werden. Dabei entstehen für die in dieser Arbeit bestrahlten Elemente im betrachteten Energiebereich zwei etwa gleich schwere Produkte. Aus dem Verlauf der Anregungsfunktion unterscheidet man zwischen schneller (Hochenergie) und langsamer (Niederenergie) Spaltung.

Darüber hinaus finden bei höheren Energien ab etwa 200 MeV auch vermehrt Spallations- und Fragmentationsreaktionen statt. Als Spallation bezeichnet man Reaktionen, bei denen aus einem hoch angeregten Kern in schneller Folge eine Vielzahl von Nukleonen oder Nukleonen-Clustern emittiert werden, was zur Bildung von Produkten großer Massendifferenz im Vergleich zum Target führt. Fragmentations- und Multifragmentationsreaktionen sind Übergangsreaktionen zwischen Spaltung und tiefer Spallation. Dabei entstehen ein oder mehrere größere Bruchstücke des Kerns.

Theoretische Beschreibungen orientieren sich an diesen Stufen und berechnen jeweils den Zustand des Kerns in den verschiedenen Phasen der Reaktion. Notwendige Informationen für diese Berechnungen sind die Dichten der Kernniveaus, die genauen Kernmassen und Bindungsenergien der Nukleonen und Komplexeilchen sowie die Potentiale der beteiligten Wechselwirkungen.

### 3.3. Bestimmung von Wirkungsquerschnitten

Als Ergebnis einer  $\gamma$ -spektrometrischen Messung einer bestrahlten Probe ergibt sich ein Spektrum, in welchem für jeden Peak eine Nettofläche  $C$  bestimmt wird.

In den folgenden Betrachtungen wird davon ausgegangen, dass dieser Peak als Folge des Zerfalls eines Nuklids mit der Zerfallskonstanten  $\lambda$  aufgetreten ist. Von der dem Zerfall zugeordneten  $\gamma$ -Linie seien die Energie  $E_\gamma$  und Übergangswahrscheinlichkeit  $I_\gamma$

bekannt. Durch Kalibrationsmessungen ist zuvor die geometrie- und energieabhängige Ansprechwahrscheinlichkeit  $\epsilon(E_\gamma)$  des Detektors bestimmt worden.

Gesucht ist nun die Aktivität  $A_{EOB}$  zum Zeitpunkt des Endes der Bestrahlung  $t_{EOB}$  (**E**nd **O**f **B**ombardment). Diese ergibt sich aus der Aktivität  $A_{BOC}$  bei Beginn der Messung  $t_{BOC}$  (**B**egin **O**f **C**ounting) nach:

$$A_{EOB} = A_{BOC} e^{\lambda t_{Decay}} \quad (3.6)$$

mit  $t_{Decay} = t_{BOC} - t_{EOB}$ . Die Aktivität zu Beginn der Messung folgt aus der ermittelten Zählrate  $R_{BOC}$ , der zugehörigen Übergangswahrscheinlichkeit und der Ansprechwahrscheinlichkeit des Detektors.

$$A_{BOC} = \frac{R_{BOC}}{\epsilon(E_\gamma) I_\gamma} \quad (3.7)$$

Falls die Halbwertszeit des Nuklids groß gegenüber der Dauer der Messung ist, kann die Zählrate als konstant angenommen werden und errechnet sich aus der Nettofläche des Peaks  $C$  und der Messzeit  $t_{Count}$ .

$$R_{BOC} = \frac{C}{t_{Count}} \quad (3.8)$$

Wenn hingegen der Zerfall des Nuklids während der Messung zu berücksichtigen ist, ergibt die Integration der zeitabhängigen Zählrate  $R(t) = R_{BOC} e^{-\lambda t}$  die Nettofläche nach

$$\begin{aligned} C &= \int_0^{t_{Count}} R(t) dt \\ &= R_{BOC} \int_0^{t_{Count}} e^{-\lambda t} dt \\ &= R_{BOC} \frac{1 - e^{-\lambda t_{Count}}}{\lambda} \end{aligned} \quad (3.9)$$

und durch Umformung

$$R_{BOC} = \frac{C \lambda}{1 - e^{-\lambda t_{Count}}} \quad (3.10)$$

Damit berechnet sich die Aktivität  $A_{EOB}$  am Bestrahlungsende wie folgt:

$$A_{EOB} = \frac{C \lambda}{(1 - e^{-\lambda t_{Count}}) \epsilon(E_\gamma) I_\gamma} e^{\lambda t_{Decay}} \quad (3.11)$$

Während der Bestrahlung werden in Abhängigkeit von der Flussdichte  $\Phi$  der Projektile und dem Reaktionswirkungsquerschnitt  $\sigma$  in  $N_T$  Targetkernen pro Zeiteinheit

$\sigma \Phi N_T$  Produktkerne erzeugt. Falls diese radioaktiv sind, zerfallen sie mit der Zerfallskonstanten  $\lambda$  und es ergibt sich die folgende Differentialgleichung für die Anzahl  $N_P$  der gebildeten Produktkerne

$$\frac{dN_P}{dt} = \sigma \Phi N_T - \lambda N_P \quad (3.12)$$

Unter der Voraussetzung der zeitlichen Konstanz der Anzahl der Targetkerne<sup>1</sup> und  $\Phi$  ergibt sich als Lösung mit der Anfangsbedingung  $N_P(t=0) \equiv N_P^{(0)}$  die Beziehung

$$N_P(t) = \frac{\sigma \Phi N_T}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) + N_P^{(0)} e^{-\lambda t} \quad (3.13)$$

Falls zu Beginn der Bestrahlung noch keine Produktkerne vorlagen, also  $N_P^{(0)} = 0$  ist, folgt für den zeitlichen Verlauf der Aktivität  $A(t) = \lambda N_P(t)$  während der Bestrahlung die Aktivierungsgleichung

$$A(t) = \sigma \Phi N_T (1 - e^{-\lambda(t-t_{BOB})}) \quad \text{mit} \quad t_{BOB} \leq t \leq t_{EOB} \quad (3.14)$$

Gleichsetzen mit Gleichung (3.11) führt schließlich mit  $t = t_{EOB}$  zu

$$\frac{C \lambda}{(1 - e^{-\lambda t_{Count}}) \epsilon(E_\gamma) I_\gamma} e^{\lambda t_{Decay}} = \sigma \Phi N_T (1 - e^{-\lambda t_{Irrad}}) \quad (3.15)$$

unter Verwendung von  $t_{Irrad} = t_{EOB} - t_{BOB}$ . Nach  $\sigma$  aufgelöst lässt sich bei bekannter Flussdichte und der gemessenen Aktivität am Bestrahlungsende der Wirkungsquerschnitt berechnen:

$$\sigma = \frac{C \lambda}{\epsilon(E_\gamma) I_\gamma \Phi N_T} \frac{e^{\lambda t_{Decay}}}{(1 - e^{-\lambda t_{Count}})(1 - e^{-\lambda t_{Irrad}})} \quad (3.16)$$

Umgekehrt ist bei bekanntem Wirkungsquerschnitt für Monitorreaktionen die Bestimmung der Flussdichte möglich.

Die Betrachtungen im vorangegangenen Abschnitt gelten nur für den einfachsten Fall einer eindeutigen, direkten Produktion ohne einen Beitrag aus dem Zerfall eines ebenfalls produzierten Mutternuklids. Ist diese Voraussetzung nicht erfüllt, gilt Lösung (3.13) nicht mehr, und es muss ein Beitrag aus dem Zerfall des Mutternuklids berücksichtigt werden. Die Aktivität des Mutternuklids bei Bestrahlungsende ist

---

<sup>1</sup>Wollte man eine Abnahme der Anzahl der Targetkerne um 1% bei einem Reaktionswirkungsquerschnitt von  $\sigma=1$  Barn und einer Flussdichte von  $\Phi = 10^{11} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$  erreichen, müsste man das Target nach  $N(t) = N_0 e^{-\sigma \Phi t}$  fast 3200 Jahre bestrahlen.

$A_M(t_{EOB})$ . Die Aktivität des Tochternuklids  $A_D^*(t_{EOB})$ , die scheinbar (also bei unkorrigierter Berechnung nach Gleichung (3.11)) vorliegt, ist die Summe aus der gesuchten Ursprungsaktivität  $A_D(t_{EOB})$  des direkt produzierten Tochternuklids und dem Beitrag der bereits in das Tochternuklid zerfallenen Mutternuklide. Kann man die Aktivität  $A_M(t_{EOB})$  des Mutternuklids bestimmen, werden die nach Gleichung (3.11) zunächst falsch berechneten Aktivitäten des Tochternuklids bei Bestrahlungsende wie folgt korrigiert:

$$A_D(t_{EOB}) = A_D^*(t_{EOB}) + A_M(t_{EOB}) \frac{\lambda_D}{\lambda_D - \lambda_M} \left( 1 - \frac{\lambda_D}{\lambda_M} \frac{1 - e^{-\lambda_M t_C}}{1 - e^{-\lambda_D t_C}} e^{-(\lambda_M - \lambda_D)t_D} \right) \quad (3.17)$$

Dabei ist  $t_C = t_{Count}$  und  $t_D = t_{Decay}$ , Größen mit Index  $M$  beziehen sich auf das Mutternuklid, solche mit dem Index  $D$  auf die Tochter.



# 4. Experimentelle Methoden

## 4.1. Durchführung der Bestrahlungsexperimente

### 4.1.1. Auswahl und Vorbereitung der Proben

In dieser Arbeit wurde in Bestrahlungen mittels der „stacked-foil-technique“ die bestehende Datenbasis für Wirkungsquerschnitte von Protonen-induzierten Kernreaktionen an schweren Elementen von den jeweiligen Schwellenenergien bis 71 MeV erweitert. Darüber hinaus wurden Proben für eine spätere Auswertung in Hinsicht auf langlebige Radionuklide bereitgestellt.

Aufgrund der hochauflösenden Gammaspektrometrie, über welche Aktivierungsprodukte noch in geringsten Konzentrationen nachgewiesen werden können, ist die Reinheit der bestrahlten Materialien von entscheidender Bedeutung. In allen Bestrahlungsexperimenten dieser Arbeit wurden Reinstelement-Materialien verwendet, deren Eigenschaften nach den Zertifizierungen des Herstellers (Goodfellow) in Tabelle 4.1 zusammengefasst sind. Da die Anzahl der produzierten Restkerne und somit der

**Tabelle 4.1.:** Eigenschaften der ausgewerteten Metallfolien.

Element	Hersteller	Reinheit	verwendete Dicken [ $\mu\text{m}$ ]
Aluminium	Goodfellow	$\geq 99.999\%$	36 ; 125
Kupfer	Goodfellow	$\geq 99.99\%$	25 ; 50
Blei	Goodfellow	$\geq 99.99\%$	125
Bismut	Goodfellow	$\geq 99.99\%$	280–480

**Tabelle 4.2.:** Isotopenzusammensetzung der verwendeten Bleifolien.

Isotop	bestimmter Anteil [%]	natürlicher Anteil [%] [RT97]	Verhältnis
$^{204}\text{Pb}$	1.4(1)	1.4(1)	1.00
$^{206}\text{Pb}$	23.2(1)	24.1(1)	0.96
$^{207}\text{Pb}$	22.6(1)	22.1(1)	1.02
$^{208}\text{Pb}$	52.8(2)	52.4(1)	1.01

berechnete Wirkungsquerschnitt direkt von der Isotopenzusammensetzung des bestrahlten Elements abhängig ist, muss diese Zusammensetzung für Proben mit mehreren stabilen Isotopen bekannt sein. Daher wurde am Forschungszentrum Jülich in der Zentralabteilung für Chemische Analysen massenspektrometrisch die Isotopenzusammensetzung der verwendeten Bleifolie bestimmt, da Blei eine große Schwankungsbreite in den Anteilen der stabilen Isotope  $^{204}\text{Pb}$ ,  $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  und  $^{208}\text{Pb}$  hat. Dies ist die Folge der Anreicherung von stabilen Endprodukten aus den natürlichen Zerfallsreihen von Uran und Thorium. Die Isotopenzusammensetzung der verwendeten Bleifolie findet sich in Tabelle 4.2 und weicht nicht mehr als wenige Prozent von der als natürlich angenommenen Zusammensetzung nach [RT97] ab. Im Folgenden wird daher diese natürliche Isotopenzusammensetzung des Probenmaterials vorausgesetzt. Die Targets werden aus dünnen Folien gestanzt. Der Durchmesser der so hergestellten Proben beträgt 15 mm. Für die Herstellung der Bismuttargets werden von einem Bismutstab möglichst dünne Scheiben abgeschnitten und anschließend poliert. Trotz der problematischen Eigenschaften von Bismut ließen sich auf diese Weise Proben mit Dicken von  $300\ \mu\text{m}$  realisieren.

Die Proben werden in einem Ultraschallbad in Methanol gründlich gereinigt. Da in der  $\gamma$ -spektrometrischen Auswertung in keinem Fall eine Kontamination aus der Aktivierung von Verschmutzungen beobachtet werden konnte, ist auf eine quantitative Entfernung möglicher Verunreinigungen zu schließen. Nach der Reinigung wird jede Probe auf einer Präzisionswaage gewogen (absolute Unsicherheit 0.02 mg) und eindeutig gekennzeichnet.

Um eine gegenseitige Kontamination der direkt im Stack aneinander liegenden Folien durch Rückstoßkerne zu verhindern, werden Catcher-Folien eingesetzt, die diese Rückstoßkerne auffangen. Um zusätzlich die Verluste durch Rückstoß in der Messfolie auszugleichen, wird also unmittelbar vor und nach der zu messenden Probe als

Catcher eine Folie gleichen Materials in den Stack gebracht, so dass (außer bei den Bismutproben) immer mindestens drei Folien eine Einheit bilden, von welchen jeweils die mittlere gemessen wird. Dieser Aufbau konnte bei den Bismutscheiben nicht angewendet werden, da drei dieser Proben den Strahl übermäßig stark gebremst hätten. Aufgrund ihrer großen Masse sind hier Rückstoßverluste und -kontaminationen unbedeutend und konnten auch nicht nachgewiesen werden.

### 4.1.2. Berechnung der Energiedegradierung des Protonenstrahls

Beim Durchgang von schweren geladenen Teilchen in Materie verlieren diese Energie durch Stöße mit den Atomen des Targets. Diese Bremsung wird beschrieben durch die Bethe–Bloch–Gleichung (4.1) nach [Fan63]:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi Z_P^2 e^4}{m_e v^2} N_T Z_T \left[ \ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) + \ln\left(\frac{1}{1-\beta^2}\right) - \beta^2 - \frac{C}{Z_T} - \frac{\delta}{2} \right] \quad (4.1)$$

Der Energieverlust pro Wegstrecke  $-dE/dx$  für Projektile der Ladung  $Z_P$  errechnet sich aus der Anzahl der Targetatome  $N_T$  mit der Ladungszahl  $Z_T$  mit den Korrekturfaktoren des mittleren Ionisationspotentials  $I$ , der Schalenkorrektur  $C$ , dem Dichteeffekt  $\delta$  und  $\beta = v/c$ .

Ausgehend von Gleichung (4.1) wurde eine parametrisierte Form entwickelt [AZ77], die sich über tabellierte Koeffizienten  $a_{i=1,\dots,7}$  besonders für die Anwendung in Bremsrechnungen eignet:

$$-\frac{dE}{N_T dx} = \frac{a_1}{\beta^2} \left[ \ln(a_2 \beta^2) - \ln(1 - \beta^2) - \beta^2 - \sum_{i=3}^7 a_i (\ln(E))^i \right] \quad (4.2)$$

Da die Bremsung der Protonen ein statistischer Prozess ist und die Protonen zu Beginn eine Energieverteilung besitzen, kommt es zu einer Verbreiterung dieser Energieverteilung, die als gaußförmig angenommen wird. Diese Energieverbreiterung wird durch  $\Delta E_{Strag}$  beschrieben, welche aus den oben genannten Größen, der Flächenbelegung  $\xi_T$ , der Avogadrozahl  $N_A$  und der Massenzahl des Targets  $A_T$  nach

$$(\Delta E_{Strag})^2 = 4\pi e^4 N_A Z_P^2 \frac{Z_T}{A_T} \xi_T \left[ 1 + \frac{4}{3} \frac{I}{m_e v^2} \ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) \right] \quad (4.3)$$

berechnet wird.

Auch räumlich weitet sich der Strahl auf. Diese Winkelverbreiterung wird gemäß [MS69] als mittlerer Divergenzwinkel  $\Theta$  berechnet:

$$\Theta^2 = \frac{2\pi Z_P^2 e^4}{E^2} N_A \frac{Z_T^2}{A_T} \xi_T \ln \left( \frac{E a_0}{Z_P Z_T^{4/3} e^2} \right) \quad \text{mit} \quad a_0 = \frac{h^2}{4\pi^2 m_e e^2} \quad (4.4)$$

Die Berechnung der Bremsung der Protonen innerhalb des Stacks erfolgt auf der Basis eines Computerprogramms nach [Bod93]. In mehreren Arbeiten (z. B. [Pro97]) wurden die Ergebnisse nach Gleichung (4.2) mit den Ansätzen anderer Autoren verglichen [FS96, ZBL85, WBP66]. Dabei zeigten sich keine Abweichungen außerhalb der angenommenen Unsicherheiten.

### 4.1.3. Durchführung der Bestrahlungen am Paul-Scherrer-Institut

Alle Bestrahlungen dieser Arbeit wurden am Phillips Injector I Cyclotron des Paul-Scherrer-Institut (PSI) in der Schweiz durchgeführt. Die Geometrie der Stackhalter, in welche die einzelnen Folien hintereinander gesetzt werden, sind durch den am PSI gegebenen Aufbau festgelegt und bestehen aus zwei verschraubten Halbschalen, deren Innendurchmesser 15 mm beträgt. Abbildung 4.1 zeigt einen Stackhalter, wie er am PSI verwendet wird. Der Halter wird in einem Abstand von weniger als 1 Meter hinter einem dünnen Austrittsfenster aus Aluminium montiert. In Tabelle 4.3 findet sich eine Übersicht aller Bestrahlungsexperimente, die im Zeitraum dieser Arbeit durchgeführt worden sind. Die bestrahlten Proben wurden über einen Zeitraum von mehreren Monaten wiederholt gemessen.

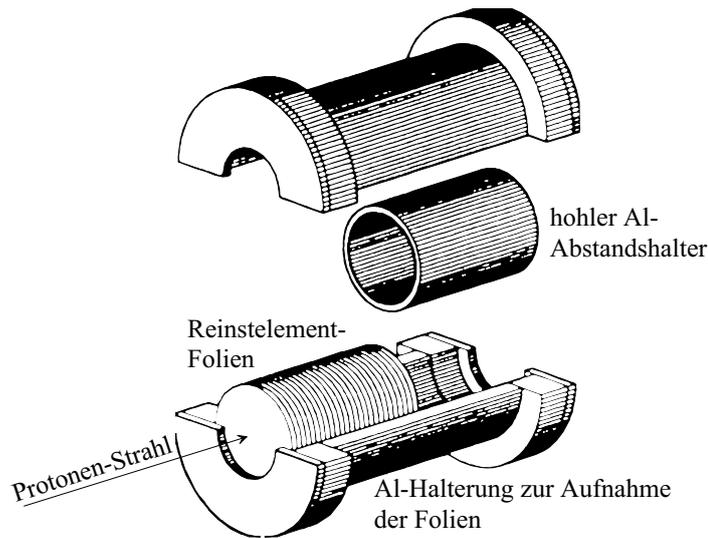
Zur online Messung und der Justierung des Protonenstrahls befindet sich ein Faraday-Cup unmittelbar hinter der Stackhalterung. Zu Beginn der Bestrahlungen wird ein leerer Stackhalter in die Bestrahlungsposition gebracht und anschließend der Protonenstrahl so eingestellt, dass kein Strahlverlust an der Innenseite des Halters auftritt. Die Stromstärke des Protonenstrahls lag meist bei etwa 50 nA. Die Proben wurden jeweils durchschnittlich 8 Stunden bestrahlt.

Alle 5 Minuten erfolgte die Messung und Protokollierung des Stroms, der über den Faraday-Cup floss. In Abbildung 4.2 ist der Verlauf einer typischen Bestrahlung dargestellt. Es ist zu erkennen, dass der Strahlstrom in diesem typischen Beispiel sehr

**Tabelle 4.3.:** Übersicht der durchgeführten Bestrahlungsexperimente.

Experiment	Energie [MeV]	Beginn der Bestrahlung	Ende der Bestrahlung	Targetelemente
Zuer01	45.003	07.11.1998 05:26	07.11.1998 12:05	Ta, Al, Cu
Zuer02	45.003	07.11.1998 18:35	08.11.1998 00:38	Ta, Al, Cu
Zuer03	45.003	07.11.1998 12:21	07.11.1998 18:22	W, Al, Cu
Zuer04	45.003	08.11.1998 00:52	08.11.1998 07:52	W, Al, Cu
Zuer05	45.003	08.11.1998 08:08	08.11.1998 19:56	Pb, Al, Cu
Zuer06	45.003	08.11.1998 20:14	09.11.1998 07:56	Bi, Al, Cu
Zuer07	70.500	24.07.1999 02:11	24.07.1999 10:00	W, Al, Cu
Zuer08	70.500	25.07.1999 01:43	25.07.1999 11:01	Re, Al, Cu
Zuer09	70.500	25.07.1999 21:13	26.07.1999 08:01	Ta, Ir, Al, Cu
Zuer0A	70.500	24.07.1999 10:15	24.07.1999 17:30	Pb, Al, Cu
Zuer0B	70.500	23.07.1999 18:02	24.07.1999 01:58	Bi, Al, Cu
Zuer0C	70.500	24.07.1999 17:41	25.07.1999 01:32	Au, Cr, Al, Cu
Zuer0D	45.002	12.11.1999 21:57	13.11.1999 13:30	Fe, Zr, Ni, Au, Al, Cu
Zuer0E	71.213	14.11.1999 12:54	15.11.1999 07:59	Fe, Zr, Ni, Au, Y, Co, Ti, Al, Cu
Zuer0F	45.002	13.11.1999 13:42	13.11.1999 21:06	Pb, Al, Cu
Zuer0G	45.002	13.11.1999 21:20	13.11.1999 23:26	Bi, Al, Cu
Zuer0I	71.151	07.04.2001 15:00	08.04.2001 00:56	Pb, Al, Cu
Zuer0M	71.004	01.11.2000 13:28	02.11.2000 08:00	BG <sup>1</sup> , Si, C, Al, Cu
Zuer0U	71.004	31.10.2000 22:38	01.11.2000 08:03	U, Al, Cu
Zuer0W	45.564	30.10.2000 23:48	31.10.2000 08:30	W, Al, Cu

<sup>1</sup>Bariumglas

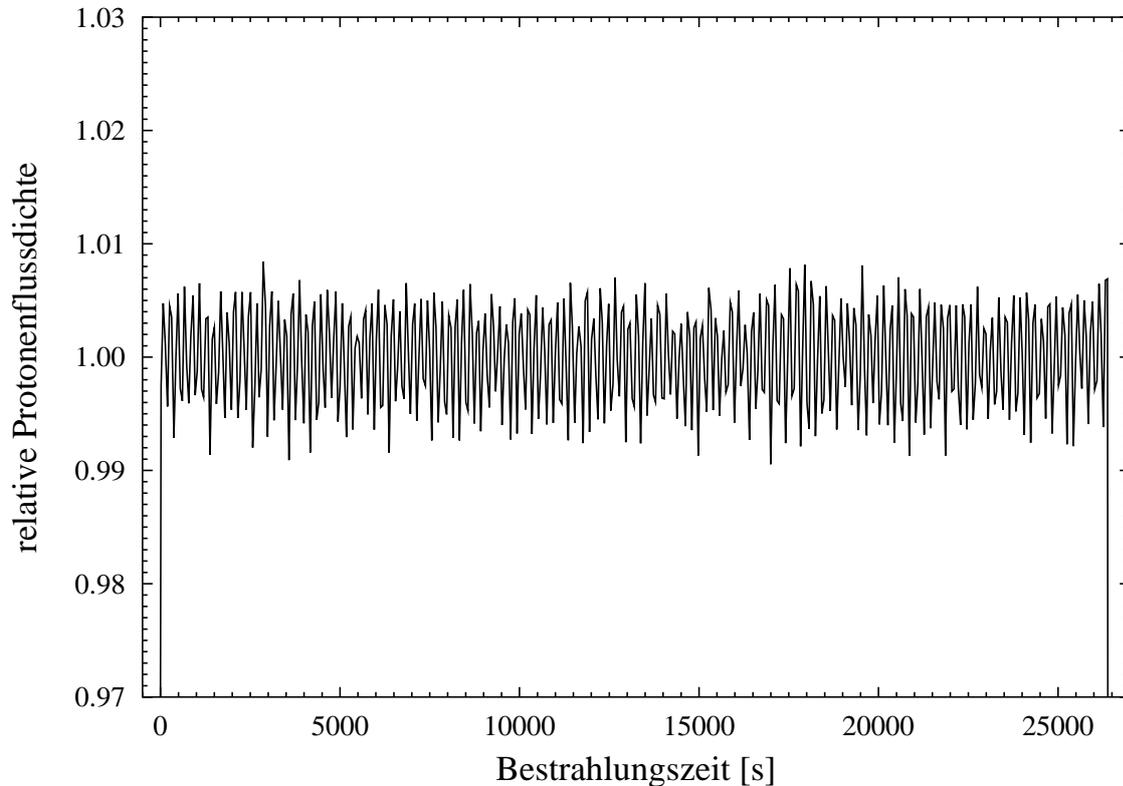


**Abbildung 4.1.:** Darstellung eines Stackhalters für Bestrahlungsexperimente am Paul-Scherrer-Institut.

stabil war und von einem mittleren Wert nie mehr als 1 % abgewichen ist.

Die Messung der Einschussenergie erfolgt mit hoher Genauigkeit über einen Analysiermagneten, der im Strahl angebracht ist. Bei der Fehlerrechnung wird allerdings eine höhere Energieunsicherheit von 0.5 MeV und eine gaußförmige Verteilung der Energien im Strahl angenommen. Dies geschieht vor allem, weil die Bremsung der Protonen mit größerer Tiefe im Stack stark von den Eigenschaften der durchdrungenen Materialien abhängen, welche sich nicht durch die Eingangsdaten der Bremsrechnung wiedergeben lassen.

Nach dem Ende der Bestrahlungen am PSI wurden die Stacks nach Köln transportiert, unmittelbar nach dem Eintreffen aus den Haltern entnommen und auf den vorbereiteten Targethaltern befestigt. Somit konnten die ersten Proben etwa 6 Stunden nach dem Ende der Bestrahlung gemessen werden.



**Abbildung 4.2.:** Verlauf der relativen Strahlintensität während der Bestrahlung Zuer0F am 13.11.1999 (EOB: 21:06:00).

## 4.2. Gammaspektrometrie

### 4.2.1. Allgemeines

Alle Messungen dieser Arbeit wurden mit Lithium-dotierten Germanium- oder Reinst-Germanium-Halbleiterdetektoren (Ge(Li) bzw. HPGe) durchgeführt. Halbleiterdetektoren vereinen eine hohe Nachweiswahrscheinlichkeit für  $\gamma$ -Quanten mit einer guten Energieauflösung. Eine umfassende Darstellung der  $\gamma$ -Spektrometrie gibt [Her86].

Im Rahmen dieser Arbeit standen in der Abteilung Nuklearchemie der Universität zu Köln 5 Detektoren zur Verfügung, so dass nach Bestrahlungsende alle Proben in schneller Abfolge gemessen werden konnten. Die technischen Daten der verwendeten Detektoren mit deren institutsinternen Bezeichnungen finden sich in Tabelle 4.4.

**Tabelle 4.4.:** Technische Daten der verwendeten Detektoren.

interne Bezeichnung	Abschirmung [cm Blei]	realisierbare Abstände [cm]	Auflösung bei		Anzahl Kanäle
			122 keV	1332 keV	
100CCM	ca. 15	6	3.0 keV	4.0 keV	4096
GeLiK1	siehe Text	5–60	3.4 keV	4.1 keV	4096
GeLiK2	siehe Text	5–60	1.5 keV	2.4 keV	4096
PbBurg	5–10	2.5–67	1.2 keV	1.9 keV	4096
Wetter	Keine	5–36	0.9 keV	1.9 keV	8192

Die beiden Detektoren **GeLiK1** und **GeLiK2** sind mit einem automatischen Probenwechslersystem ausgerüstet, welches die vollautomatische Messung von bis zu 20 Proben erlaubt. Dabei ist das Magazin für die Proben jeweils von 10 cm Blei umgeben, zusätzlich sind diese beiden Detektoren in Richtung des Magazins ebenfalls mit 10 cm Blei abgeschirmt. Der Abstand zwischen den Detektoren und dem Magazin des Wechslersystems beträgt bei **GeLiK1** 3 m und bei **GeLiK2** etwa 5 m [Dra87]. Alle Detektoren sind an Personal-Computer angeschlossen, in denen mittels ADC-Karten die Digitalisierung der Impulse und anschließend die Speicherung der Spektren erfolgt.

Jede Abfolge der Messungen ist ein Kompromiss aus Häufigkeit und zeitlicher Dauer der einzelnen Messung. Es hat sich als vorteilhaft erwiesen, zugunsten einer längeren Einzelmesszeit auf mehrere kurze Messungen zu verzichten, weil sonst nur in den stärksten Peaks genügend Counts gezählt werden können. Die längeren Messzeiten unterstützen besonders die eindeutige Identifizierung und Nuklid-Zuordnung, weil mehrere Linien des Nuklids im Spektrum zu sehen sind. Nachteilig ist hingegen, dass sehr kurzlebige Produkte unter Umständen nur in wenigen Spektren nachzuweisen sind.

In allen Messungen beträgt daher die Messzeit mindestens 600 Sekunden. Je nach Auslastung der Detektoren und Anzahl der Proben können so die Targets mindestens 5 mal in den ersten Tagen gemessen werden. Anschließend erfolgen die Messungen regelmäßig in wachsenden zeitlichen Abständen, wobei die Messzeit entsprechend verlängert werden. In dieser Arbeit konnten die meisten schweren Targets mindestens 10 mal und bis zu 11 Monate nach dem Ende der Bestrahlung gemessen werden.

Der Prozess der Auswertung von  $\gamma$ -spektrometrischen Messungen zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten beinhaltet 4 Schritte, die in den folgenden Abschnitten dargestellt werden:

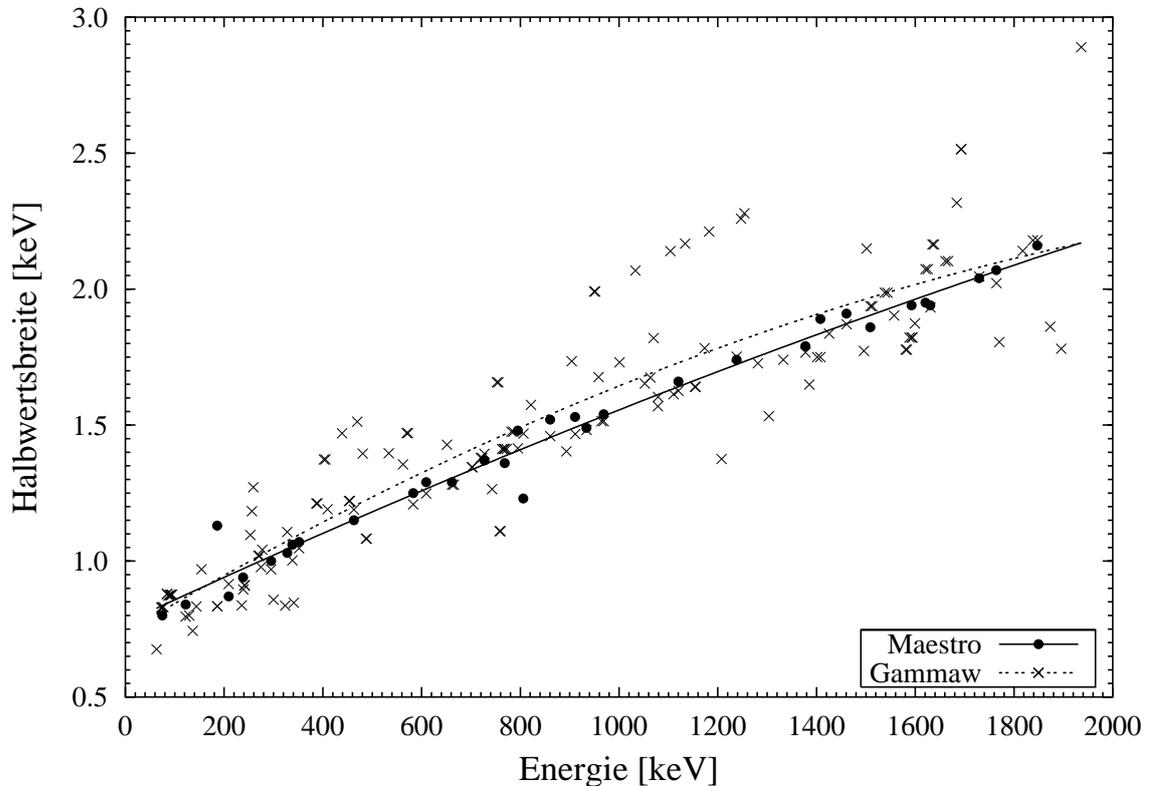
1. Kalibration der Halbleiterdetektoren
2. Bestimmung der Peaks im gemessenen Spektrum, dabei Ermittlung der Nettopeakflächen, der Position, der Halbwertsbreite und der zugehörigen Unsicherheiten
3. Identifikation und Zuordnung der gefundenen Peaks zu den produzierten Nukliden
4. Berechnung der Nuklidaktivitäten und der sich daraus ergebenden Wirkungsquerschnitte

Eine ausführliche Darstellung aller Details des gesamten Ablaufs würde den Rahmen dieser Arbeit sprengen. Zu Punkt 1 werden daher nur die Grundlagen und deren Bedeutung für die weiteren Schritte dargelegt. Anschließend wird kurz das Programm GAMMAW beschrieben, welches als kommerziell erhältliche Software die unter 2 genannten Aufgaben erfüllt. Zuletzt werden die im Rahmen dieser Promotion entwickelten Lösungen vorgestellt, mit denen die eigentliche Auswertung (Punkte 3 und 4) durchgeführt wird.

### 4.2.2. Kalibration der Detektoren

#### Kalibration der Halbwertsbreite

Bei der Bestimmung und Beschreibung der vorhandenen Peaks in einem Spektrum ist die Halbwertsbreite in Abhängigkeit von der Energie der wichtigste Parameter. Ohne eine genaue Vorgabe dieser Funktion kann keine sinnvolle Analyse des Spektrums vorgenommen werden, da diese Funktion entscheidet, ob ein Peak als Singulett oder Multiplett interpretiert wird. Für die grundlegende Bestimmung der Halbwertsbreitenfunktion ist zu beachten, dass die verwendeten Kalibrationsspektren einerseits keine



**Abbildung 4.3.:** Bestimmung der Halbwertsbreitenfunktion in einem Untergrundspektrum des *Wetter*-Detektors. Dargestellt sind die ermittelten Breiten einzelner Peaks zweier Analyse-Programme für  $\gamma$ -Spektren (MAESTRO und GAMMAW) in keV und der Fit einer quadratischen Funktion an die Werte.

komplexen Multiplets enthalten dürfen, andererseits genügend Peaks über den ganzen Energiebereich aufweisen sollen. In diesem Zusammenhang haben sich besonders die Spektren des natürlichen Hintergrundes als geeignete Ausgangsbasis bewährt. Auch Standardpräparate mit vielen  $\gamma$ -Linien wie  $^{226}\text{Ra}$  und  $^{152}\text{Eu}$  werden zu diesem Zweck verwendet. Abbildung 4.3 zeigt die Bestimmung der Halbwertsbreitenkalibration in einem Untergrundspektrum, welches über einen Zeitraum von 7 Tagen mit dem Detektor *Wetter* aufgenommen wurde.

### **Kalibration der Energie**

Die Kalibration der Zuordnung einer Kanalnummer zu einer Energie der  $\gamma$ -Quanten ermöglicht bei bekannten Kerndaten eine Identifikation des zerfallenen Nuklids. Daher ist eine möglichst genaue Energiekalibration erforderlich. Die Kenntnis der Genauigkeit dieser Funktion kann die Entscheidung einer Zuordnung zur  $\gamma$ -Linie eines bestimmten Nuklids unterstützen.

Es hat sich gezeigt, dass sich auch bei sorgfältigster Bestimmung der Energiefunktion keine Genauigkeit erreichen lässt, die alleine als Kriterium einer Identifikation ausreichend wäre. Besonders bei Peaks mit geringer Zählrate ist eine zu enge Auslegung der zugeordneten Energieinformation zu vermeiden. Auch die Vielzahl der auftretenden  $\gamma$ -Linien und der damit zwangsläufig einhergehenden Überlagerung von benachbarten  $\gamma$ -Linien in einem Peak führt zu Unsicherheiten.

Daher wurde besonderer Wert auf die permanente Ausarbeitung und Überprüfung der verwendeten Energiefunktionen gelegt. Hier haben sich wiederholte Messungen auf verschiedenen Detektoren bewährt. Die jeweils vorhandenen typischen Abweichungen der Kalibrationen der einzelnen Detektoren gleichen sich aus und ergeben somit in einer Mittelung wesentlich genauere Energiezuordnungen.

Meist genügt für die Energiefunktion ein linearer Zusammenhang zwischen Kanal und Energie, um eine bessere Genauigkeit als 1 keV zu erreichen. Für manche Detektoren lassen sich allerdings mit einem Polynom zweiten oder dritten Grades geringere Abweichungen des Fits von den Daten erreichen. Dabei werden sukzessiv alle identifizierten Peaks in die Anpassung integriert und ermöglichen so einen zunehmend verbesserten Fit mit bis zu 50 Kanal-Energie-Paaren. Umgekehrt liefert eine grafische Darstellung der Abweichungen der Daten vom Ergebnis des Fits Hinweise auf zweifelhafte Zuordnungen, die überprüft werden müssen.

### **Kalibration der Efficiency**

Für die funktionale Darstellung der absoluten Ansprechwahrscheinlichkeit eines Halbleiterdetektors in Abhängigkeit von der Energie gibt es in der Literatur viele phänomenologische Vorschläge, die an die jeweils einzeln bestimmten Stützpunkte in einem

Fit angepasst werden. Eine Übersicht geben [DH88] und [KFÖ+98]. In der Vergangenheit wurde in unserer Gruppe mit der Gleichung (4.5) nach [GA85] gearbeitet:

$$\epsilon(E_\gamma) = \frac{1}{E_\gamma} \sum_{i=1}^8 a_i \left( \ln \frac{E_\gamma}{E_0} \right)^{(i-1)} \quad (i \neq 5, 7) \quad (4.5)$$

In den Auswertungen dieser Arbeit stellte sich heraus, dass eine Gleichung nach [FÖK+97] die experimentellen Daten besser wiedergibt:

$$\ln \epsilon = \sum_{i=1}^{max_i} b_i \left( \ln \frac{E_\gamma}{E_0} \right)^{(i-1)} \quad (max_i = 7, \dots, 9) \quad (4.6)$$

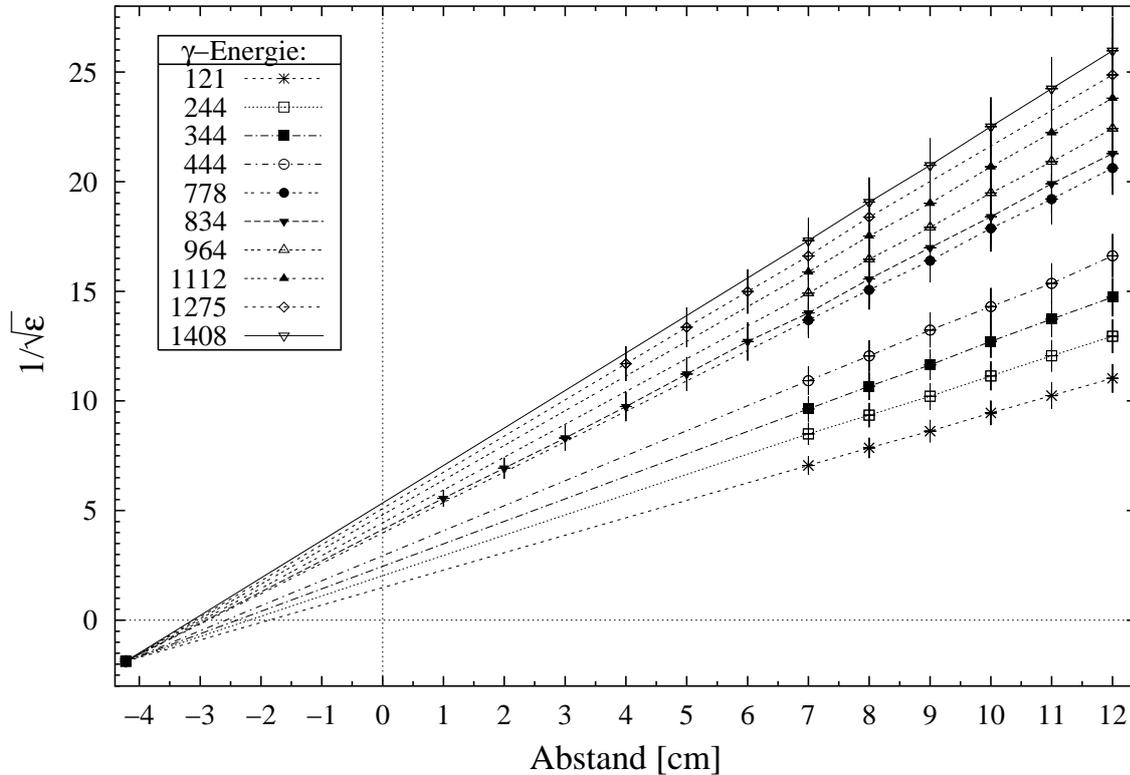
Da beide Funktionen bei höheren Energien unphysikalische Oszillationen zeigen, erfolgt eine stetige Ergänzung durch eine zweite Funktion für Energien ab etwa 200 keV. Dabei wird ein linearer Fit der Datenpunkte ab der Grenzenergie auf einer doppelt-logarithmischer Skala durchgeführt.

Voraussetzung für eine zuverlässige und eindeutige Bestimmung der Efficiency ist das Messen von Standardpräparaten und die Ermittlung möglichst vieler Einzelwerte im gesamten Energiebereich. Es ergibt sich hierbei die Schwierigkeit, dass viele Standardpräparate bei kleinen Abständen zum Detektor zu einer zu hohen Totzeit führen. Außerdem sind bei vielen Detektoren mehrere Geometrien zu berücksichtigen und damit die Messung der Efficiency sehr aufwändig.

Es wurde daher in dieser Arbeit eine Methode entwickelt, welche die Extrapolation der Efficiencies von bekannten Detektor-Proben-Abständen auf beliebige andere Entfernungen gestattet.

### **Extrapolation von unbekanntem Efficiencies**

Grundlage der Extrapolation ist das quadratische Abstandsgesetz der Zählraten. Streng gilt dieser Zusammenhang nur in größeren Entfernungen und bei höheren Energien der Strahlung. Die erste Einschränkung liegt an der Ungültigkeit der Annahme einer Punktquelle und eines punktförmigen Detektors. Die Abweichungen vom Abstandsgesetz bei niedrigeren Energien resultiert hauptsächlich aus der stärkeren Störanfälligkeit dieser Strahlung gegenüber Streuung und Absorption.



**Abbildung 4.4.:** Kehrwert der Wurzel der Efficiency gegen den Abstand aufgetragen für den Detektor PbBurg für verschiedene Energien.

Ausgehend von der Darstellung in [DH88] wurde im Rahmen dieser Arbeit gezeigt, dass aus einer gegebenen Efficiency für einen bestimmten Abstand im Energiebereich zwischen 100 keV und 2000 keV die Ansprechwahrscheinlichkeiten anderer Entfernungen zuverlässig modelliert werden können. Dabei ist zu beachten, dass bei Standardpräparaten mit mehreren  $\gamma$ -Linien und geringeren Abständen Koinzidenzen zu großen Abweichungen führen und daher ungeeignet für diese Betrachtungen sind. Trägt man den Kehrwert der Quadratwurzel aus der ermittelten Efficiency (die ja proportional zur Zählrate ist, aber eine Berücksichtigung der Totzeit und des Zerfalls einbezieht) gegen den Abstand auf, so erhält man Werte auf einer Geraden, die auch bei geringen Abständen keine Abweichung zeigen. In Abbildung 4.4 ist ein Beispiel einer solchen Messung aufgetragen. Die Abstände, an welchen der Kehrwert der Efficiency 0 wird, liegen in Abhängigkeit von der Energie der  $\gamma$ -Strahlung in verschiedenen Tiefen des Kristalls. Debertin und Helmer [DH88] schlagen vor, diese

Position in Abhängigkeit von der Energie zu tabellieren und für die Extrapolation zu verwenden. In Erweiterung dieser Methode kann man anhand der Abbildung 4.4 erkennen, dass für Energien von mehr als 100 keV die gezeigten Geraden wie erwartet an verschiedenen Stellen die Abszisse schneiden, darüber hinaus aber einen gemeinsamen Schnittpunkt haben, der bei negativen x- und y-Werten auftritt. Obgleich die unphysikalische Konsequenz einer negativen Wurzel der Efficiency offensichtlich ist, resultieren praktische Anwendungen: der Schnittpunkt der Geraden ist für den Detektor eindeutig und in weiten Bereichen unabhängig von der konkreten Einstellung der Elektronik und über lange Zeiten stabil.

Es gelingt mit dieser Methode Spektren erfolgreich quantitativ auszuwerten, für die ursprünglich keine Efficiencies vorlagen. Auch der Aufwand für die regelmäßig durchzuführenden Überprüfungen der Efficiencies kann reduziert werden. Allerdings bleibt festzuhalten, dass für eine zuverlässige Qualitätskontrolle diese Messungen unersetzlich sind.

### **Totzeit und Nulleffekt**

Die Einflüsse von Totzeit und Nulleffekt zeigen sich bei sehr hohen bzw. bei sehr geringen Zählraten. Bei hohen Zählraten ist die Dauer zwischen einfallenden Quanten in der Größenordnung der Zeit, die benötigt wird, um das Signal in der Elektronik zu verarbeiten. Die Totzeit ist durch die Elektronik der Signalverarbeitung vorgegeben. Daher ist nicht nur die Zeitdifferenz zwischen Beginn und Ende der Messung relevant ( $t_{Count}$  oder  $t_{Real}$ ), sondern auch diejenige Zeit, in welcher der Detektor tatsächlich in der Lage war, Impulse entgegen zu nehmen ( $t_{Life}$ ). Messungen von Standardpräparaten in verschiedenen Entfernungen (und damit mit verschiedenen Totzeiten) validierten die angegebenen Totzeiten der Messgeräte.

Bei langen Messzeiten treten im Spektrum neben den Peaks, die aus der Aktivität der Probe resultieren, auch Peaks durch vorhandene radioaktive Nuklide in der Umgebung der Detektoren auf. Dies sind vor allem Nuklide der natürlichen Zerfallsreihen wie  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  und  $^{235}\text{U}$  und deren Tochternukliden sowie  $^{40}\text{K}$ . Auch  $^{137}\text{Cs}$  ist, vermutlich als Folge des Reaktorunfalls in Tschernobyl, vertreten. Auf den un abgeschirmten Detektoren ist zudem bei sehr langen Messzeiten die  $\gamma$ -Strahlung einer starken  $^{60}\text{Co}$ -Quelle zu messen, die sich in einem benachbarten Raum befindet.

Die Korrektur dieser Hintergrundstrahlung erfolgt durch Abzug des Untergrundspektrums vom Spektrum der Probe, wobei das Untergrundspektrum gemäß dem Verhältnis der Messzeiten umskaliert wird. Grundsätzlich kann der Untergrundabzug dabei auf zwei Arten erfolgen: entweder man subtrahiert ein Untergrundspektrum direkt kanalweise vom gemessenen Spektrum, oder es werden die im Hintergrund gemessenen Peaks bestimmt und diese dann von den ermittelten Peakflächen in der Messung der Probe abgezogen.

Für die direkte Subtraktion der einzelnen Kanäle voneinander spricht die einfache Anwendbarkeit dieses Verfahrens. Es ist keine Analyse des Spektrums nötig und ein gemessenes Untergrundspektrum kann sofort verwendet werden. Auch könnte sich die Bestimmung der Peaks verbessern, da ein Teil der Untergrundverteilung im Probenpektrum bereits abgezogen wäre. Voraussetzung für dieses Verfahren ist die gleiche Kanal-Energie-Zuordnung beider Spektren, was über einen langen Zeitraum wegen der Instabilitäten der Detektoren nur schwer realisierbar ist. Für die aufwändigere Methode sprechen dagegen mehrere Vorteile: die Analysen der Hintergrundspektren sind direkter Bestandteil der Qualitätssicherung und geben Hinweise auf mögliche Kontaminationen. Sie dienen darüber hinaus als Kalibrationsspektren für die Energie- und Halbwertsbreitencharakteristik der Detektoren. Die Methode ist unempfindlich gegenüber Schwankungen der Kanalzuordnung und gewährleistet somit eine direkte Vergleichbarkeit der Hintergrundspektren über einen großen Zeitraum.

Es werden daher alle Messungen dieser Arbeit peakweise gegenüber der vorhandenen Hintergrundstrahlung korrigiert. Für jeden Peak wird geprüft, ob in einem geringeren Abstand als seiner Halbwertsbreite ein Peak des Untergrunds vorhanden ist. Es wird dann ein im Messzeitverhältnis skaliertes Anteil subtrahiert.

### **4.2.3. Bestimmung der Peakparameter**

An dieser Stelle ist es nicht möglich, alle Aspekte der Identifikation und Beschreibung der Peaks in den Spektren und den beteiligten Programmen in allen Details wiederzugeben. Es soll daher versucht werden, den prinzipiellen Ablauf und die zugrunde liegenden Überlegungen darzustellen.

Bis auf wenige Kalibrationsmessungen wurden alle Spektren dieser Arbeit mit dem kommerziell erhältlichen Programm GAMMAW der Dr. Westmeier GmbH<sup>1</sup> ausgewertet. Um die nötigen Kalibrationsinformationen der Detektoren für die Analyse mit GAMMAW zur Verfügung zu stellen, wurden einige Kalibrationsspektren vorab mit der Software MAESTRO von Ortec Instruments<sup>2</sup> ausgewertet [Moe96].

### **Einführung in GammaW**

GAMMAW ist ein Gamma-Spektren-Analyseprogramm sehr hoher Empfindlichkeit. Bis zu 30 Peakflächen werden innerhalb eines Kanalfensters simultan berechnet. Damit ist auch die Analyse und Entfaltung komplexer, überlappender Multiplets möglich und auch sehr schwache Peaks lassen sich noch auswerten. Für eine ausführliche Beschreibung von GAMMAW sei auf [Wes95] verwiesen. Die Details der in GAMMAW verwendeten Verfahren finden sich in der Literatur [Wes81a, Wes81b, Sla76, Wes86, JWP87].

Für jeden gefundenen Peak in einem Spektrum gibt GAMMAW dessen Position, die Nettofläche, die Halbwertsbreite sowie deren Unsicherheiten aus. Die Unsicherheit für die Peakfläche wird aus dem Integral über die Peakfunktion berechnet, wobei die Unsicherheiten der beschreibenden Peakparameter gemäß der Fehlerfortpflanzung berücksichtigt werden. Zu dieser aus dem Fit bestimmten Unsicherheit der Peakfläche wird durch GAMMAW die doppelte statistische Unsicherheit der vorher subtrahierten Untergrundverteilung quadratisch addiert. Die Ergebnisse der Analyse durch GAMMAW werden anschließend gespeichert und durch die in dieser Arbeit entwickelten Lösungen zur eigentlichen Auswertung herangezogen.

### **Anwendung von GammaW**

In der Vergangenheit wurde in unserer Abteilung die Auswertung mit GAMMAW durch externe Programme unterstützt, die das Laden der Spektren, die Kalibration von GAMMAW und das Speichern der Ergebnisse über automatisch generierte

---

<sup>1</sup>GAMMAW Version 17.15, Dr. Westmeier Gesellschaft für Kernspektrometrie mbH, Möllner Weg 32, D-35085 Ebsdorfergrund-Mölln, [www.westmeier.com](http://www.westmeier.com)

<sup>2</sup>MAESTRO Version 3.20, EG&G Ortec, 100 Midland Road, Oak Ridge, TN 37831-0895

Befehlsdateien ausführen und größtenteils am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (Hannover) entwickelt worden waren [Glo93, Kri95]. Die Analyse der Peaks erfolgte überwiegend manuell, vor allem um eine gleichzeitige visuelle Bewertung der Spektren und den darin gefundenen Peaks zu gewährleisten. Der Benutzer musste sukzessive die Fits der Peaks begutachten, akzeptieren oder nach erneuter Definition der Region nochmals berechnen lassen. Diese visuelle Kontrolle ist gerade bei den komplexen Spektren der schweren Targets unerlässlich.

Als Alternative bietet GAMMAW auch die vollautomatische Auswertung der Spektren ohne manuellen Eingriff des Benutzers an. Hierbei entfällt die unmittelbare Möglichkeit der Kontrolle und Korrektur der Peakfits. Vorteil der vollautomatischen Auswertung ist die Möglichkeit zur Auswertung einer Vielzahl von Spektren ohne jeden Eingriff des Benutzers und damit eine vollständige Objektivität der Berechnungen, andererseits ist dabei auch die Vorgabe verschiedener Parametersätze für die Analyse mit GAMMAW möglich, um deren Einfluss zu untersuchen und diese zu optimieren.

Eine erfolgreiche vollautomatische Auswertung besitzt daher zwei wichtige Voraussetzungen:

- ◇ Eine sehr genaue *Kenntnis der Detektoreigenschaften* und verbunden damit deren permanente Qualitätskontrolle, und
- ◇ eine Möglichkeit der *visuellen Kontrolle* der Ergebnisse.

In dieser Arbeit wurde diese zweite Methode implementiert und eindeutig gezeigt, dass mit dieser überwiegend automatisierten Analyse durch GAMMAW die erfolgreiche Auswertung sehr großer Datenmengen möglich ist.

### **Bewertung von GammaW**

Der Einsatz von GAMMAW als automatisches Auswertungssystem ohne wesentliche manuelle Eingriffe bei der Spektrenauswertung impliziert eine ausführliche Kontrolle der erbrachten Ergebnisse, wobei schon frühere Arbeiten [Glo98, Sud98] gezeigt haben, dass die automatischen Ergebnisse in Umfang und Korrektheit kritisch zu

bewerten sind. Als Ergebnis intensiver Untersuchungen zur Qualität der erzielbaren Ergebnisse steht damit ein Abwägen zwischen der Inkaufnahme von Schwächen der automatischen Analyseergebnisse in Verbindung mit den Vorteilen des geringeren Zeitaufwands und der größeren Objektivität gegenüber einer intensiven manuellen Analyse.

Kennt man allerdings die spezifischen Merkmale der automatischen Analyse durch GAMMAW und bringt diese bei der Interpretation der Ergebnisse ein, ist eine anschließende Elimination von falsch erkannten Peaks ebenso zuverlässig, wie eine manuelle Kontrolle während der Analyse mit GAMMAW. In vorherigen Arbeiten wurde zu Recht darauf hingewiesen [Glo98], dass GAMMAW nicht nur in den Schulterzonen der Peaks tendenziell zu viele  $\gamma$ -Linien identifiziert, sondern unter Umständen auch sehr schwache isolierte Peaks übersieht. Dieses Problem lässt sich aber durch geeignete Wahl der Parameter stark reduzieren und gleicht sich durch die große Anzahl von Messung der Proben aus, da dieses Problem in verschiedenen Spektren selten die gleichen Peaks betrifft.

Einen wertenden Überblick über die verschiedenen Programme zur Analyse von  $\gamma$ -Spektren geben auch [BOE<sup>+</sup>97, NP98].

### 4.2.4. Identifizierung der Aktivierungsprodukte

#### Nuklidbibliotheken

Hilfreich für die erfolgreiche Zuordnung der gemessenen  $\gamma$ -Linien zu den jeweiligen Radionukliden ist die Wahl von möglichst genau abgestimmten Nuklidbibliotheken. Dabei fließen die Erkenntnisse aus vorangegangenen Arbeiten ebenso ein, wie theoretische Vorarbeiten. Insgesamt umfasst der benutzte Katalog [Wes00] mehr als 1550 Nuklide mit etwa 31300 eingetragenen  $\gamma$ -Linien. Für die Zwecke dieser Arbeit eignet sich dieser Katalog besonders gut, da Übergänge von kurzlebigen Tochternukliden auch unter den  $\gamma$ -Linien einer langlebiger Mutter verzeichnet sind, wobei die Übergangswahrscheinlichkeiten entsprechend der Halbwertszeiten umgerechnet wurden. Voraussetzung für dieses Verfahren ist das radioaktive Gleichgewicht zwischen Mutter und Tochternuklid und ein vollständiger Zerfall der direkt produzierten

Tochternuklide. Beide Annahmen sind für die betrachteten Bestrahlungsexperimente erfüllt.

Um die Identifikation der  $\gamma$ -Linien zu erleichtern, wird die Nuklidbibliothek selektiv in ihrem Umfang beschränkt. Nuklide können nach 3 Kriterien von der Berücksichtigung ausgeschlossen werden: falls mehr als 25 Halbwertszeiten eines Nuklids bis zur Messung vergangen waren, ist eine messbare Aktivität extrem unwahrscheinlich. Umgekehrt können sehr langlebige Nuklide in den ersten Messungen gegenüber den großen Aktivitäten der kurzlebigen Produkten ebenfalls kaum nachgewiesen werden. Des Weiteren werden alle Nuklide ausgeschlossen, die ausschließlich über  $\gamma$ -Linien unterhalb von 100 keV nachzuweisen wären. Aufgrund der Röntgenfluoreszenz in den Targets und der Bleiabschirmung ist dieser Bereich der Spektren nicht auswertbar. Zuletzt kann eine Betrachtung der zu erwartenden Produkte eines bestimmten Targets die möglichen Nuklide weiter reduzieren.

### **Kriterien der Identifikation**

In der Literatur finden sich nur wenige etablierte Verfahren zur Identifikation von Radionukliden in sehr komplexen Spektren aus Aktivierungsversuchen. Die Erfahrungen vorangegangener Arbeiten haben gezeigt, dass die Entscheidung, ob ein Nuklid als präsent angesehen wird und bei der Auswertung berücksichtigt wird, immer der erfahrene Anwender treffen muss. Das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Programm unterstützt den Benutzer hierbei und zeigt genau die Informationen an, die in einer konkreten Situation relevant sind (Ein Beispiel zeigt Abbildung 4.5). Diese Informationen unterscheiden sich, je nachdem ob es darum geht, einen einzelnen Peak einem möglichen Nuklid zuzuordnen, oder ob die prinzipielle Präsenz eines Nuklids festgestellt werden soll.

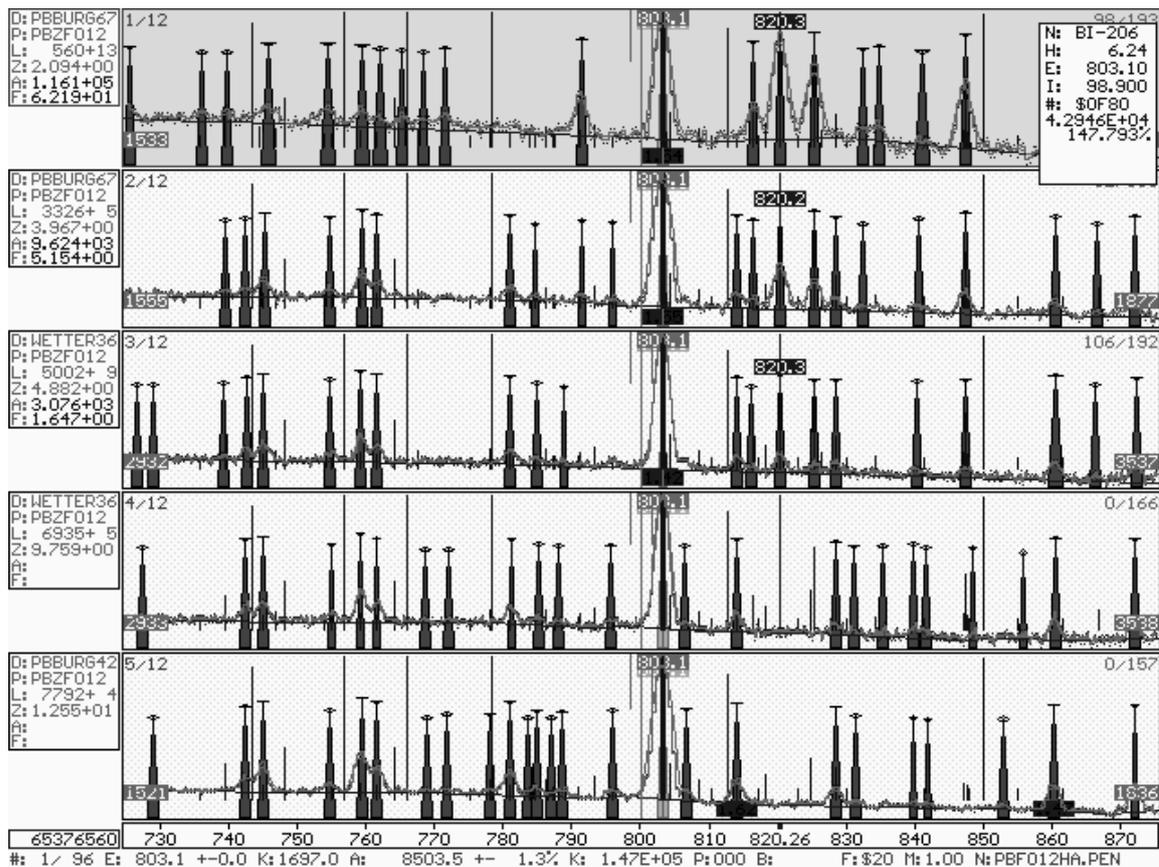


Abbildung 4.5.: Bildschirmansicht des Auswertungsprogramms beim Vergleich mehrerer analysierter Spektren. Alle Ausschnitte zeigen den gleichen Energiebereich der Spektren, die in zeitlicher Abfolge sortiert sind.

## 4.2.5. Berechnung der Aktivitäten und Ableitung der Wirkungsquerschnitte

### Bestimmung der Einzelaktivität

Für jeden identifizierten Peak eines Spektrums wird nach Gleichung (3.7) zunächst eine Aktivität für den Zeitpunkt des Messbeginns berechnet. Über die Zeit zwischen Bestrahlungsende und Messbeginn wird nach Gleichung (3.11) die aus einem Peak resultierende Aktivität am Bestrahlungsende des angenommenen Nuklids errechnet. Dabei wird gegenüber Gleichung (3.11) der Einfluss der Totzeit durch die Ersetzung

$$C \longrightarrow C \cdot \frac{t_{Real}}{t_{Life}} \quad (4.7)$$

berücksichtigt, da die Zeit  $t_{Count}$  in (3.11) der gesamten Messzeit  $t_{Real}$  entspricht, aber nur während der Zeit  $t_{Life}$  Ereignisse gezählt werden können.

### Selbstabsorption der Gammastrahlung

Die Dicke der verwendeten Targets ist ein Kompromiss aus technischen Gegebenheiten und dem Ziel einer möglichst feinen Energiestaffelung der Proben. Ein weiterer Einfluss der Probendicke zeigt sich in der Selbstabsorption von  $\gamma$ -Strahlung. Die Absorption der Quanten innerhalb der Probe erfolgt nach der Beziehung

$$R(d) = R_0 \frac{1 - \exp(-\mu d)}{\mu d} \quad (4.8)$$

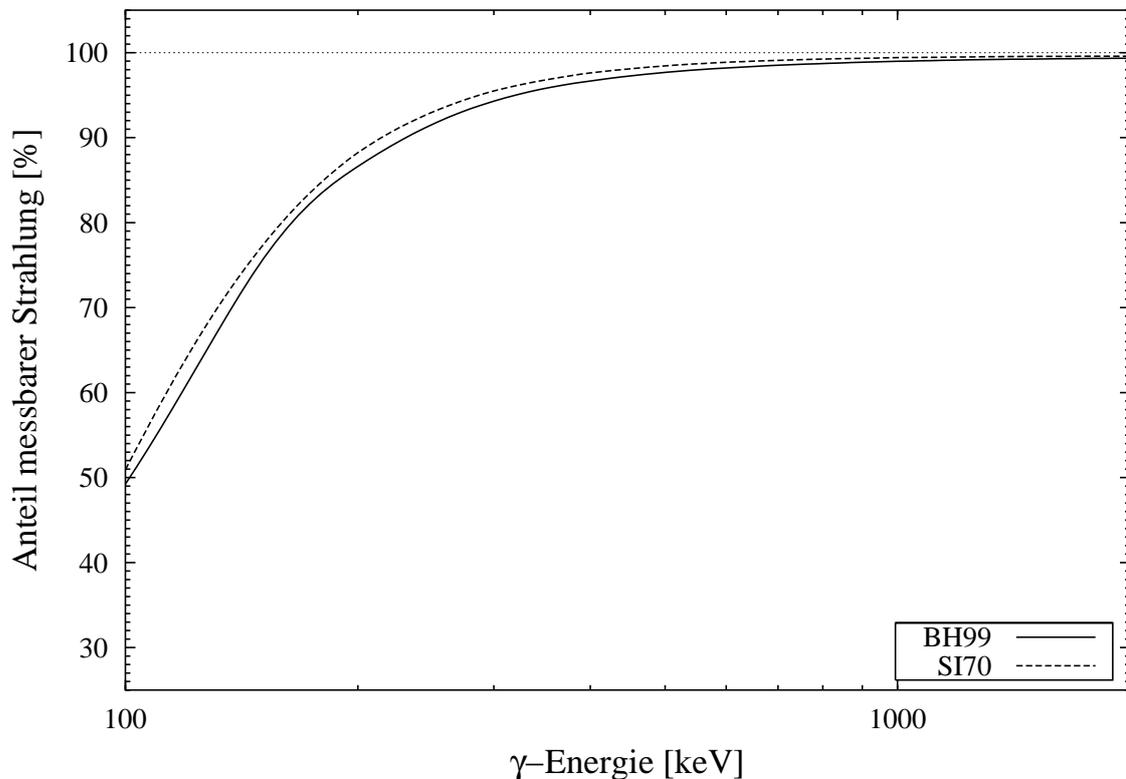
Dabei ist  $R(d)$  der Anteil der detektierbaren Quanten von  $R_0$ ,  $\mu$  der Absorptionskoeffizient und  $d$  die Flächenbelegung der Probe. In allen berechneten Aktivitäten wird diese Selbstabsorption nach den tabellierten Daten aus [SI70] berücksichtigt. In Abbildung 4.6 ist die Selbstabsorption von  $\gamma$ -Strahlung in einer typischen Bismutprobe dargestellt. Ein Vergleich mit den Ergebnissen neuerer Koeffizienten nach [BH99], die im Verlauf dieser Arbeit bekannt wurden, zeigt im zur Auswertung herangezogenen Energiebereich zwischen 100 keV und 2 MeV keine größeren Abweichungen als 2%.

### Mittelwertbildung der Aktivitäten

Aus allen bestimmten Einzelaktivitäten schließt der Benutzer offensichtlich gestörte Ergebnisse aus und es wird abschließend für die Aktivität am Bestrahlungsende ein fehlergewichteter Mittelwert  $\bar{A}(t_{EOB})$  sowie dessen Unsicherheit aus den  $n$  unabhängig bestimmten  $A_i(t_{EOB})$  mit den Unsicherheiten  $\Delta A_i(t_{EOB})$  berechnet:

$$\bar{A}(t_{EOB}) = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{A_i}{(\Delta A_i)^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{(\Delta A_i)^2}} \quad (4.9)$$

$$\Delta \bar{A}(t_{EOB}) = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n \frac{(A_i - \bar{A})^2}{(\Delta A_i)^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{(\Delta A_i)^2}}} \quad (4.10)$$



**Abbildung 4.6.:** Selbstabsorption von  $\gamma$ -Strahlung in einer Bismutprobe (Durchmesser 15 mm, Massenbelegung  $0.285 \text{ g/cm}^2$ ) auf Grundlage verschiedener Absorptionskoeffizienten.

### Berechnung der Wirkungsquerschnitte

Aus der Aktivität am Bestrahlungsende nach Gleichung (4.9) wird nach Gleichung (3.16) der Wirkungsquerschnitt berechnet. Dazu wird die Flussdichte für die entsprechende Probe eingelesen und über deren Masse und Atomgewicht die Anzahl der Targetkerne berechnet. Zusammen mit der gemittelten Protonenenergie innerhalb der Probe wird dieses Ergebnis schließlich ausgegeben.

## 4.3. Bestimmung der Flussdichte

Neben den Haupttargetmaterialien werden Monitorfolien aus Aluminium und Kupfer in den Stack eingebracht, um retrospektiv die Flussdichte der Protonen zu ermitteln.

Da die Wirkungsquerschnitte für die Monitorreaktionen bekannt sind, ist durch Umstellung von Gleichung (3.16) die Flussdichte  $\Phi$  eindeutig bestimmbar. Die Wahl der Monitorwirkungsquerschnitte hat entscheidenden Einfluss auf alle folgenden Ergebnisse, daher folgt eine Diskussion der verschiedenen Datensätze für die verwendeten Reaktionen  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$  und  $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{65}\text{Zn}$ .

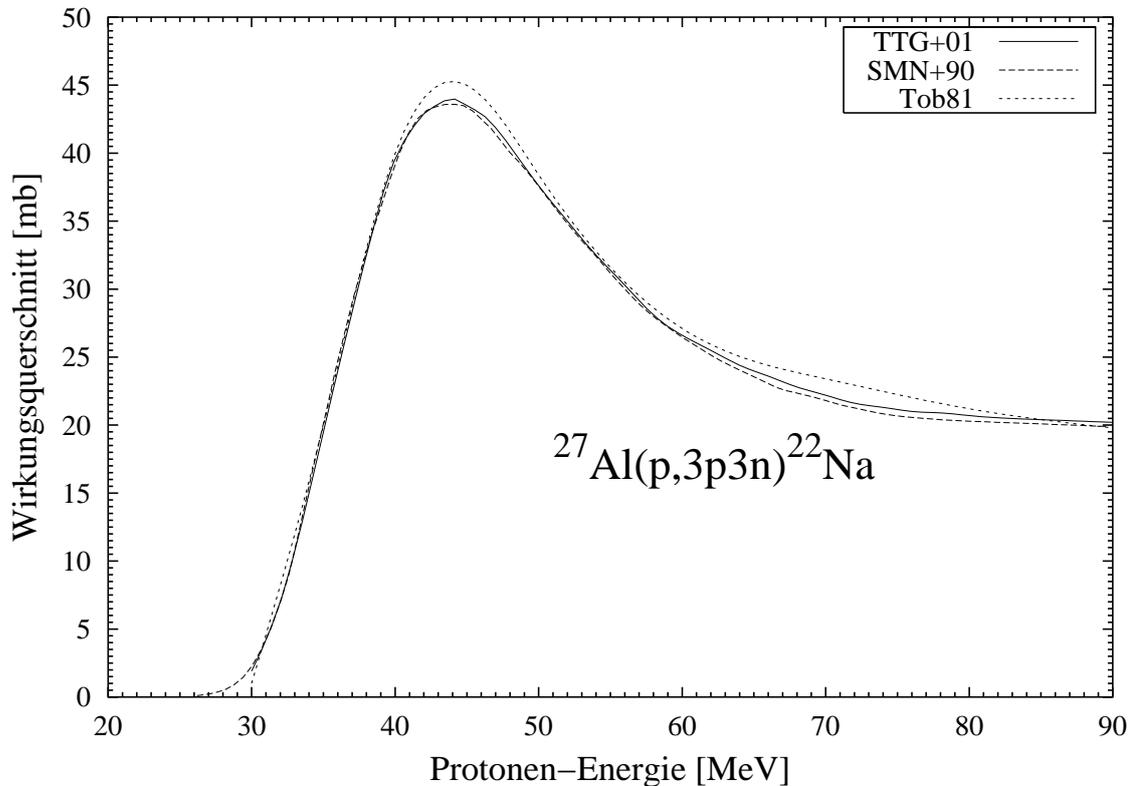
### 4.3.1. Diskussion der verwendeten Monitorwirkungsquerschnitte

#### Die Reaktion $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$

Die Messung des in Aluminium produzierten  $^{22}\text{Na}$  bietet für die Flussbestimmung einige Vorteile. Aufgrund der hohen Schwellenenergie von 22 MeV ist ein Einfluss von sekundären Teilchen unwahrscheinlich, die Halbwertszeit von 2.6 Jahren lässt auch eine spätere Messung zu und die emittierte  $\gamma$ -Linie von 1274.5 keV ist sehr gut messbar. In älteren Arbeiten wurden auf die Monitorwirkungsquerschnitte nach [Tob81] zurückgegriffen, die aus vorhandenen Absolutmessungen evaluiert wurden. 1990 wurden neue Absolutmessungen durchgeführt [SMN<sup>+</sup>90]. Diese stimmen im Rahmen der Fehler mit [Tob81] überein, geben aber unterhalb von 200 MeV einen leicht anderen Verlauf wieder. In ausführlichen Untersuchungen [MBB<sup>+</sup>97] wurde ein Datensatz erstellt, der unterhalb von 200 MeV auf [SMN<sup>+</sup>90] beruht und darüber durch [Tob81] ergänzt wird. Zwischen den gegebenen Messwerten wurde mittels kubischen Splines eine kontinuierliche Funktion bestimmt und für alle nachfolgenden Auswertungen verwendet. Neuerdings gibt es mit [TTG<sup>+</sup>01] einen weiteren Satz an evaluierten Wirkungsquerschnitten der IAEA, der in dieser Arbeit zum ersten Mal ebenfalls berücksichtigt wird. In Abbildung 4.7 sind die Monitorwirkungsquerschnitte aus diesen 3 Datensätzen dargestellt. Deutliche Diskrepanzen bestehen nur für die Daten nach [Tob81], die beiden anderen Sätze liefern erwartungsgemäß in der Auswertung keine abweichenden Ergebnisse.

#### Die Reaktion $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{65}\text{Zn}$

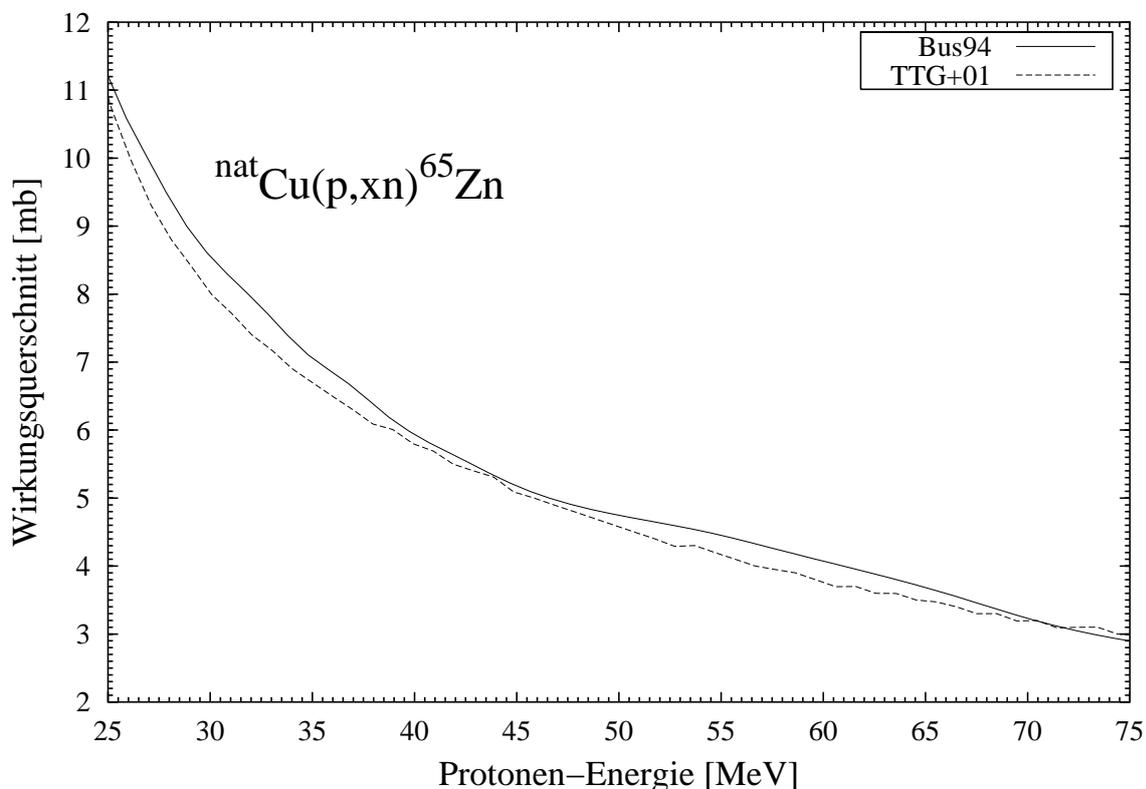
Da wegen der starken Steigung der Anregungsfunktion von  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$  die Flussbestimmung über  $^{22}\text{Na}$  unterhalb von etwa 60 MeV schwierig ist, wird



**Abbildung 4.7.:** Monitorwirkungsquerschnitte für die Reaktion  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$  nach [Tob81, SMN+90, TTG+01] bis 90 MeV. Die Einzelwerte wurden mittels kubischer Splines geglättet, um die Unterschiede besser darzustellen.

zusätzlich das in natürlichem Kupfer gebildete  $^{65}\text{Zn}$  gemessen. Diese Methode besitzt die gleichen günstigen Eigenschaften wie die Flussdichtenbestimmung über  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$ : lange Halbwertszeit des  $^{65}\text{Zn}$  von 244.2 Tagen, eine eindeutige  $\gamma$ -Linie bei 1115.55 keV und günstige mechanische Eigenschaften der Kupferfolien. Hier ist allerdings zu beachten, dass die einzige  $\gamma$ -Linie des  $^{65}\text{Zn}$  auf unzureichend abgeschirmten Detektoren bei zu geringer Auflösung mit der 1120.3 keV Linie des  $^{226}\text{Ra}$  im natürlichen Hintergrund überlagert sein kann. Für die Produktion von  $^{65}\text{Zn}$  aus  $^{nat}\text{Cu}$  wurde am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover ein evaluierter Datensatz erstellt [Bus94], in dem die vorhandenen Daten mittels eines kubischen Splines in eine kontinuierliche Funktion überführt wurden. Auch in [TTG+01] findet sich eine evaluierte Anregungsfunktion für diese Reaktion.

Abbildung 4.8 zeigt die beiden Anregungsfunktionen im für diese Arbeit relevanten Energiebereich zwischen 25 und 75 MeV. Obwohl die Unterschiede nicht mehr als ei-



**Abbildung 4.8.:** Monitorwirkungsquerschnitte für die Reaktion  ${}^{nat}\text{Cu}(p,xn){}^{65}\text{Zn}$  in geglätteter Darstellung nach [Bus94, TTG<sup>+</sup>01] zwischen 25 und 75 MeV.

nige Prozent betragen, konnte in dieser Arbeit nur mit den Daten nach [Bus94] eine konsistente Bestimmung der Flussdichte realisiert werden.

#### 4.3.2. Energieabhängigkeit der Monitorwirkungsquerschnitte

Die beiden angewendeten Anregungsfunktionen für die Monitorreaktionen besitzen ein starkes Maximum mit steilen Flanken. Dies bedeutet, dass selbst eine geringe Energieunsicherheit eine große Varianz der Monitorwirkungsquerschnitte nach sich zieht. In den Bereichen der Anregungsfunktion, in denen die zweite Ableitung deutlich von 0 abweicht, ist zudem eine Faltung mit dem energetischen Strahlprofil nötig. Dazu wird eine gaußförmige Energieverteilung der Protonen um die errechnete mittlere Energie angenommen. Die Unsicherheit der Monitorwirkungsquerschnitte wurde wegen der verschiedenen Steigungen der Anregungsfunktionen als die Hälfte der

Differenz der Wirkungsquerschnitte bei der maximalen und der minimalen Energie bestimmt, die sich jeweils aus der Unsicherheit der Energie ergeben.

Da die Energieunsicherheit des Strahls gerade in den hinteren Folien des Stacks am größten ist, also in dem Energiebereich, in dem auch die größte Steigung der Anregungsfunktionen liegt, ergeben sich bei der Bestimmung der Monitorwirkungsquerschnitte für einzelne Folien sehr große Fehler. Daher wurde in dieser Arbeit die Flussbestimmung überwiegend mit den vorderen Monitorfolien im Stack durchgeführt und die hinteren Folien nur zu Kontrollzwecken ausgewertet. Über diese Auswertungen war es möglich, Unstimmigkeiten in den Angaben zur vorgesehenen Protonenenergie einiger Bestrahlungen festzustellen.

### 4.3.3. Verlauf der Protonenflussdichte innerhalb der Stacks

Eine deutliche Verringerung der Flussdichte innerhalb des Stacks findet nicht statt, da der Protonenstrahl bei den Bestrahlungen am PSI sehr scharf parallel gebündelt auf den Stack trifft und keine größere Divergenz des Strahls auftritt. Die exzellente Fokussierung des Strahls kann über Verfärbungen in den Kupferfolien bestätigt werden. Auch die Absorption der Protonen in Kernreaktionen stellt keinen messbaren Verlust dar<sup>3</sup>. Die Konstanz der Flussdichte innerhalb des Stacks konnte experimentell eindeutig bestätigt werden. Nach Gleichung (3.16) wird für jede Aluminiumfolie und jede Kupferfolie die Protonenflussdichte innerhalb dieser Folie bestimmt. Aus den Einzelflussdichten in den vorderen Monitorfolien wird ein fehlergewichteter Mittelwert gebildet und als Flussdichte für den gesamten Stack veranschlagt.

---

<sup>3</sup>Ausgehend von einem Reaktionswirkungsquerschnitt von  $\sigma=1$  Barn ergibt sich für eine Stack aus 100 Bleifolien einer Dicke von  $50\ \mu\text{m}$  über  $I(x) = I_0 e^{-\sigma n x}$  eine nukleare Absorption von etwa 0.3%

## 4.4. Fehlerbetrachtung

### 4.4.1. Unsicherheiten bei der Probenpräparation

#### Unsicherheit bei der Anzahl der Targetkerne

Die Berechnung der Anzahl der Targetkerne  $N_T$  erfolgt über die Masse der Probe  $m_T$  gemäß

$$N_T = N_A \frac{m_T}{M_T} \quad (4.11)$$

wobei  $N_A$  die Avogadrozahl und  $M_T$  das Atomgewicht sind. Die beiden Konstanten werden als fehlerfrei angenommen, so dass der Wägefehler von 0.02 mg die einzige Quelle der Unsicherheit von  $N_T$  darstellt. Dieser Beitrag zum Gesamtfehler war in der vorliegenden Arbeit immer geringer als 0.1 %.

#### Verfälschungen durch unreine Proben

In Abschnitt 4.1.1 wurden die Reinheiten der verwendeten Materialien aufgeführt und anschließend die Reinigung beschrieben. In den Ergebnissen wurden keine Verunreinigungen in den Targets festgestellt. Fehlerhafte Resultate aus diesen Quellen werden daher ausgeschlossen.

#### Verluste und Kontaminationen durch Rückstoßprodukte

Durch die Bestrahlung der Targets (mit Ausnahme von Bismut) in Gruppen von mindestens drei hintereinander liegenden Folien des gleichen Materials ist gewährleistet, dass sich die Verluste durch Rückstöße aus der mittleren in die dahinter platzierte Folie mit den Rückstoßprodukten aus der davor liegenden ausgleichen. In den Bismutproben konnten keine Produkte nachgewiesen werden, die aus davor liegenden Aluminium- oder Kupferfolien hätten stammen können. Auch die Verluste aus der Bismutprobe dürften aufgrund ihrer großen Masse vernachlässigbar sein. Insgesamt wird in dieser Arbeit davon ausgegangen, dass keine Fehler durch mögliche Verluste oder Kontaminationen aufgetreten sind.

## 4.4.2. Unsicherheiten der Gammaskpektrometrie

### Unsicherheiten der Messtechnik

In diesen Bereich fallen die Effekte, die aus messtechnischen Gründen eine Verfälschung der Ergebnisse verursachen können. Bei sehr hohen Zählraten können „Pile-Up“-Effekte auftreten, wenn die Impulse in so rascher Folge auftreten, dass das Signal des Verstärkers noch nicht vollständig abgeklungen ist und vom nächsten überlagert wird. Dies führt im Spektrum zu einem Abweichen des Peaks in der höherenergetischen Flanke von der angenommenen Gaußform und damit einem fehlerhaften Ergebnis des Fits durch GAMMAW. Dieser Effekt wurde in dieser Arbeit nicht beobachtet und wird daher vernachlässigt.

Unabhängig von der Zählrate kann es bei  $\gamma$ -Quanten mit einer Energie von mehr als 1022 keV als Folge der Paarbildung zu „Single-“ und „Double-Escape-Peaks“ kommen. Diese treten auf, wenn eines oder beide der Annihilations-Quanten von 511 keV den Detektor verlassen haben, bevor sie in Wechselwirkung mit dem Kristall treten konnten. Dieser Effekt wächst mit der Energie der primären  $\gamma$ -Quanten und geringerer Größe des Detektors. Zwar ist eine falsche Identifikation dieser Peaks unwahrscheinlich, aber bei einer Überlagerung mit einem auszuwertenden Peak könnten fehlerhafte Flächen ermittelt werden. Auch dieser Effekt wurde in dieser Arbeit nicht beobachtet.

Wie in Kapitel 4.2.2 beschrieben, wurden Tests bezüglich der Zuverlässigkeit der angegebenen Totzeiten durchgeführt und keine Abweichungen festgestellt. Die Angaben der Messgeräte bezüglich  $t_{Real}$  und  $t_{Life}$  werden daher als fehlerfrei angenommen.

Ein weiterer Effekt, der die Flächen der Peaks vermindern oder zusätzliche Peaks vortäuschen kann, ist die Koinzidenz von  $\gamma$ -Quanten. Dabei lassen sich „echte“ und „zufällige“ Koinzidenzen unterscheiden. Zufällige Koinzidenzen treten unabhängig von den verwendeten Geometrien bei hohen Zählraten auf, wenn zwei Quanten so schnell nacheinander im Detektor registriert werden, dass sie irrtümlich als ein Photon mit der Summe der Energien der einzelnen Photonen detektiert werden. In allen Messungen dieser Arbeit waren die Zählraten zu gering, als dass solche Effekte eine Rolle hätten spielen können.

Demgegenüber sind echte Koinzidenzen nicht von der Aktivität abhängig, sondern vom emittierenden Nuklid und dessen Zerfallsschema sowie der vorliegenden Geometrie. Die Effekte bei echten Koinzidenzen sind besonders bei nahen Abständen der Probe zum Detektor äußerst komplex und können hier nur angedeutet werden. Eine ausführliche Behandlung der Problematik findet sich z. B. in [DS90] und [Neu99]. Eine grundsätzliche Betrachtung [Glo98] führt zu dem Ergebnis, dass bei den in dieser Arbeit verwendeten Geometrien und Nukliden in den meisten Fällen diese Effekte zu vernachlässigen sind, aber in einzelnen Situationen einen geringen Einfluss haben könnten, insbesondere bei den Messungen lange nach Bestrahlungsende, die in einem Abstand von 12 cm vom Detektor durchgeführt wurden. Zwar wurden die theoretisch möglichen Effekte in der Praxis nicht beobachtet, aber in Konsistenz mit vorangegangenen Arbeiten und im Sinne einer konservativen Fehlerabschätzung mit einem Fehler von 4 % berücksichtigt [Glo98].

### **Unsicherheit der Flächenbestimmung**

Bereits bei der Beschreibung von GAMMAW wurde die Ermittlung der Unsicherheiten durch dieses Programm dargelegt. Laut [Wes95] beschreiben die angegebenen Unsicherheiten die statistische Unsicherheit mit dem etwa 1.0 bis 1.1-fachen der einfachen Standardabweichung.

Bei den analysierten Peaks dieser Arbeit bewegten sich die Unsicherheiten der Peakflächen zwischen 0.2 % und mehr als 80 %. Zunächst wurden alle Peaks von der Auswertung ausgeschlossen, die einen größeren Flächenfehler als 50 % hatten. In späteren Auswertungen wurden allerdings alle Peaks berücksichtigt, weil auch Peaks mit höheren Fehlern quantitativ auswertbar waren. Dies spricht für eine Überschätzung der Fehlerangaben durch GAMMAW, dennoch wurden diese Angaben in die weitere Auswertung übernommen.

### **Unsicherheit der Selbstabsorption**

Alle gemessenen Zählraten dieser Arbeit werden gemäß Kapitel 4.2.5 wegen der Verluste durch Selbstabsorption korrigiert. Die zugrunde liegenden Daten nach [SI70]

werden ohne Fehler angegeben. Ein Vergleich mit den neueren Daten anderer Autoren [BH99] ergibt keine nennenswerte Abweichung in dem Energiebereich oberhalb von 100 keV, der bei der Auswertung berücksichtigt wurde (Abbildung 4.6). Eine größere Ungenauigkeit der Absorptionskoeffizienten wäre bei der Auswertung von Nukliden mit mehreren  $\gamma$ -Linien über einen weiten Energiebereich aufgefallen. Der Beitrag zur gesamten Unsicherheit aus dieser Quelle wird daher vernachlässigt.

### **Unsicherheiten durch die Untergrundkorrektur**

Eine wesentliche Korrektur stellt vor allem bei den späteren und deshalb länger andauernden Messungen der Abzug von Peaks der natürlichen Hintergrundstrahlung dar. Besonders auf den unabgeschirmten Detektoren können die ermittelten Peakflächen stark von Untergrundlinien gestört sein. Über den gesamten Zeitraum dieser Arbeit wurden kontinuierliche Messungen des Untergrundes auf allen Detektoren in allen Geometrien durchgeführt. Der Einfluss der Geometrie auf die ermittelten Untergrundspektren besteht darin, dass beispielsweise am Detektor PbBurg manche Geometrien eine teilweise Öffnung der Abschirmung erfordern.

Es konnte innerhalb von 4 Jahren keine signifikante Änderung der Hintergrundstrahlung festgestellt werden, was auch eine Kontamination ausschließt. Für die korrigierten Peakflächen wurde die Unsicherheit additiv aus ihrer ursprünglichen und der des Untergrundpeaks bestimmt.

### **Unsicherheiten der Efficiency**

Die Efficiency der Detektoren geht direkt in jede berechnete Aktivität ein, und muss deshalb sorgfältig bestimmt werden. Die Erfahrungen in der  $\gamma$ -Spektrometrie zeigen, dass die Efficiency in Abhängigkeit von der  $\gamma$ -Energie in doppelt-logarithmischer Darstellung einen glatten, durch Polynome beschreibbaren Verlauf hat. Deshalb sind einzelne Efficiency-Punkte, die aus dieser Darstellung heraus fallen, eindeutig feststellbar. Dieses empirische Merkmal einer konsistenten Funktion für die Nachweiswahrscheinlichkeit der Detektoren konnte in der vorliegenden Arbeit eingehalten werden. Somit begrenzen sich die Unsicherheiten der Efficiency auf die zugrunde liegenden

Daten der Standardpräparate und die Qualität des Fits. Die Unsicherheiten der Aktivitätsangaben der Standardpräparate liegen nach Angaben der Hersteller zwischen 2% und 5%. Im Rahmen dieser Unsicherheiten lassen sich auch diese Aktivitäten wieder aus den bestimmten Efficiencies reproduzieren. Es wird daher als gesamte Unsicherheit die obere Grenze von 5% für die Efficiency angenommen.

### **Unsicherheiten der grundlegenden nuklearen Daten**

Auf den nuklearen Zerfallsdaten, die sowohl zur Identifikation der Nuklide genutzt werden, als auch bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte eine entscheidende Rolle spielen, basieren alle Ergebnisse dieser Arbeit. Neben der Unsicherheit der Daten muss auch ihre Vollständigkeit und Zuverlässigkeit diskutiert werden. Anders als in früheren Arbeiten an unserem Institut, die auf die Kerndaten nach [RW83] basierten, wurde der neuere Katalog von [Wes00] genutzt. Zwar waren in [RW83] die Unsicherheiten für die Energien und Intensitäten angegeben, sie fanden aber in der Fehlerdiskussion keine Berücksichtigung, da nur die Fehler der Übergangswahrscheinlichkeiten auf die Ergebnisse wirken und mit weniger als 0.5% gegenüber den übrigen Quellen zu vernachlässigen sind. Die Unsicherheiten der Energie spielen nur bei der Zuordnung von Peaks eine Rolle und stellen daher keinen Beitrag zur Unsicherheit der Ergebnisse dar.

Die neueren Daten [Wes00] beinhalten in der vorliegenden Form keine Angaben über die Unsicherheiten, aber im Vergleich werden sie durchweg mit höherer Genauigkeit angegeben und besitzen damit vermutlich auch mindestens eine so kleine Unsicherheit, wie die bisher verwendeten. Deshalb werden die genutzten Daten der Übergangswahrscheinlichkeiten als fehlerfrei angesehen.

Auch die Halbwertszeiten sind im Allgemeinen mit ausreichender Genauigkeit bekannt, es wurde aber im Rahmen dieser Arbeit eine Abweichung für  $^{205}\text{Bi}$  festgestellt (Kapitel 5.1). Je nach dem Zeitpunkt der Messung können auch geringe Abweichungen der Halbwertszeit großen Einfluss haben.  $T_{1/2}^{(w)}$  sei die wahre Halbwertszeit und  $T_{1/2}^{(f)}$  die irrtümlich falsche Halbwertszeit. Deren relative Abweichung sei  $t_f = T_{1/2}^{(w)}/T_{1/2}^{(f)}$ . Dann ergibt sich für das Verhältnis der ermittelten Aktivitäten bei

Bestrahlungsende in Abhängigkeit der vergangenen Zeit  $t$  oder deren Verhältnis zur Halbwertszeit  $t_h = t/T_{1/2}^{(w)}$ :

$$\frac{A_{EOB}^{(w)}}{A_{EOB}^{(f)}} = \frac{\exp(\ln 2 t/T_{1/2}^{(w)})}{\exp(\ln 2 t/T_{1/2}^{(f)})} = 2^{t_h(1-t_f)} \quad (4.12)$$

Damit ergibt sich für  $t_h = 10$  und einem Fehler der Halbwertszeit von 0.5 % eine Abweichung der falsch berechneten Aktivität von der echten Aktivität bei Bestrahlungsende von 3.5 %. Die Wahrscheinlichkeit eines großen Einflusses einer fehlerhaften Halbwertszeit ist aber gering: es liegen außer für die kurzlebigen Produkte ausreichend Messungen mit  $t_h \leq 3$  vor. Hier ist der resultierende Fehler der berechneten Aktivität nur etwas mehr als 1 % bei einer angenommenen Abweichung der Halbwertszeit von 0.5 %. Des weiteren würde eine fehlerhafte Halbwertszeit in der grafischen Darstellung der ermittelten Einzelaktivitäten als monotoner Trend auffallen, wie es beim  $^{205}\text{Bi}$  auch tatsächlich der Fall war. Es wird daher in dieser Arbeit kein zusätzlicher Fehler durch die Unsicherheiten der verwendeten Kerndaten angesetzt.

#### 4.4.3. Unsicherheiten der Flussbestimmung

Die Bestimmung der Flussdichte unterliegt für jede Einzelprobe den gleichen Einflüssen wie die Berechnung der Aktivitäten für die Wirkungsquerschnitte, zuzüglich der Unsicherheit der verwendeten Monitorwirkungsquerschnitte. In Kapitel 4.3 wurde bereits dargestellt, wie die Unsicherheit des Wirkungsquerschnitts bestimmt wurde.

Insgesamt wird für die ermittelten Mittelwerte als minimale Unsicherheit 5 % angenommen, welche die absoluten Unsicherheiten der Monitoranregungsfunktionen ausdrückt.

#### 4.4.4. Unsicherheiten der abschließenden Berechnung

Die Mittelwertbildung gemäß Gleichung (4.9) liefert den Fehler des Mittelwertes. Grundsätzlich wurde dieser Fehler als Unsicherheit des Gesamtergebnisses angenommen. Es muss aber angemerkt werden, dass diese Angabe nicht immer dem subjektiven Eindruck des Betrachters entspricht, da sich für Werte, die zwar nicht stark um

einen Mittelwert schwanken, aber jeweils mit großen Unsicherheiten behaftet sind, eine sehr kleine Unsicherheit ergeben kann. Als Gesamtunsicherheit für die gemittelten Wirkungsquerschnitte dieser Arbeit ergeben sich Werte zwischen 5 % und mehr als 90 %, wobei die größten Unsicherheiten durch Korrekturen aus der Berücksichtigung von Zerfällen der Mutternuklide resultieren.

#### 4.4.5. Unsicherheiten der Protonenenergie

Drei Effekte tragen zur Unsicherheit der berechneten Protonenenergie für eine bestimmte Probe bei. Zunächst sind die primären Protonen nicht monoenergetisch, sondern besitzen eine Unsicherheit von  $\Delta E_{Beam}$ . Nach Gleichung (4.3) bewirkt der statistische Charakter eine zusätzliche Unsicherheit von  $\Delta E_{Strag}$ . Als drittes muss berücksichtigt werden, dass sich die Energie innerhalb jeder Folie deutlich ändert, daher muss als maximale Unsicherheit  $\Delta E_{Foil}$  die Hälfte des gesamten Energieverlustes innerhalb einer Folie angesetzt werden. Damit folgt insgesamt für die Unsicherheit der berechneten Energie der Protonen

$$\Delta E = \sqrt{(\Delta E_{Beam})^2 + (\Delta E_{Foil})^2 + (\Delta E_{Strag})^2} \quad (4.13)$$

Für fast alle Proben war die Unsicherheit der Protonenenergie geringer als 4 %, aber gerade bei den hinten im Stack platzierten Bismutproben betrug diese in Ausnahmen bis zu 2.9 MeV oder mehr als 30 %.

### 4.5. Qualitätssicherung

Ein Hauptaugenmerk dieser Arbeit wurde auf die Definition und Implementation der Qualitätssicherung gelegt. An dieser Stelle soll eine allgemeinere Einführung in die Ziele der Qualitätssicherung gegeben werden, um in späteren Abschnitten die Umsetzung zu erläutern.

Das Ziel der Qualitätssicherung ist die Gewährleistung von Qualität, im Falle eines Messlabors ist dies die Sicherheit bei den analytischen Aussagen. Nach DIN ISO 9000 ff. und DIN EN 45.000 ff. ist die Qualitätssicherung ein Sammelbegriff für notwendige Maßnahmen, die es erlauben, Aussagen über die Qualität und Fehler

von Ergebnissen zu treffen. Qualität im Sinne der Qualitätssicherung ist damit die Gebrauchstauglichkeit und ein Maß für die Erfüllung von bestimmten Forderungen.

Zwar sind diese Vorschriften in wissenschaftlichen Messungen nicht bindend, sie geben aber Empfehlungen vor, deren Prinzipien im Folgenden diskutiert werden. Mehrere Parameter sind für die Qualität von Messergebnissen von Bedeutung:

- ◇ Qualifikation der Mitarbeiter:  
Theoretische Kenntnisse und entsprechende Weiterbildung sind eine entscheidende Voraussetzung für die Beurteilung von analytischen Problemen und eine richtige Interpretation von Ergebnissen.
- ◇ Qualität der Prüfeinrichtungen:  
Die zur Qualitätskontrolle eingesetzten Geräte müssen regelmäßig gewartet, gepflegt, kalibriert und gegebenenfalls geeicht werden.
- ◇ Qualität der Analyseverfahren:  
Die Validierung von Analyseverfahren und die Auswertung von Analyseergebnissen müssen nach einheitlichen Grundsätzen erfolgen, um Vergleiche zwischen verschiedenen Verfahren anstellen zu können. Ein Analyseverfahren muss ständig darauf hin überprüft werden, ob es der einmal festgeschriebenen Verfahrensbeschreibung entspricht.

Die Qualitätskontrollen umfassen:

- ◇ Die Kontrolle der Reproduzierbarkeit eines Detektorsystems (Funktionskontrolle) durch wiederholte Messungen in bestimmten Zeitabständen derselben Probe unter gleichen Messbedingungen. Dabei müssen auch die relevanten Detektorparameter Auflösung und Nachweiswahrscheinlichkeit in einem Standardverfahren überprüft werden.  
  
Dafür müssen einfach zu bedienende und automatisch ablaufende Programme entwickelt werden, die diese Aufgabe nach der Aufnahme eines Kalibrationspektrums durchführen und die Ergebnisse ausgeben und protokollieren.
- ◇ Die Kontrolle der Richtigkeit einer Methode durch wiederholte Messungen von Standardproben, die z. B. von der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt

**Tabelle 4.5.:** Übersicht der Qualitätskontrollen.

Kontrollpunkt	Durchführung	Häufigkeit
Reproduzierbarkeit	Messung eines Punktpräparates oder einer geeigneten Probe in gut reproduzierbarer Geometrie, dabei Schnellanalyse der wichtigsten Detektorparameter	wöchentlich
Untergrund durch Hintergrundstrahlung	Nulleffektmessung mit leerem, bzw. ohne Messgefäß mit möglichst langen Messzeiten (z.B. während eines Wochenendes); Blindproben bei neuem Probenmaterial	14-täglich bis monatlich
Richtigkeit	Messung von Standardproben	vierteljährlich

(PTB) bereitgestellt werden. Hierfür sind auch Proben geeignet, die von den Leitstellen aus PTB-Standards hergestellt und zur Durchführung von Ringversuchen an die Messstellen versandt werden. Damit können systematische Fehler eines Verfahrens erkannt werden. Diese Proben können auch zur Kontrolle der Reproduzierbarkeit benutzt werden.

- ◇ Die regelmäßige Kontrolle des Untergrundes durch Hintergrundstrahlung, gegebenenfalls mit Blindproben.
- ◇ Die Auswertung von extern bezogenen Standard-Proben.
- ◇ Stichprobenartige Wiederholungen von Messungen und Auswertungen.

Beispiele für Umfang, Häufigkeit und Art der Qualitätskontrollen sind in Tabelle 4.5 zusammengestellt. Die Durchführung und Ergebnisse dieser Messungen müssen protokolliert und kontrolliert werden [Kan92]. Die bei den wöchentlichen Kontrollmessungen bestimmten Detektorparameter sollten protokolliert und zusammen mit allen technischen Daten aufbewahrt werden. Alle Standardeinstellungen der Elektronik sollten festgeschrieben sein, alle Änderungen an Einstellungen oder Parametern, das Hoch- und Herunterfahren der Detektoren muss aufgezeichnet werden und alle Parameter mit den Vorgaben verglichen werden. Weitere Beispiele für Kontrollpunkte sind:

- ◇ Qualität der Probenlagerungs- und Konservierungsmaßnahmen testen,

- ◇ Festschreiben der Methodenparameter,
- ◇ Probenplanung und Probenverwaltung,
- ◇ einheitliche Dokumentation der Ergebnisse.

### 4.5.1. Beispiel zur Qualitätssicherung

Ein wichtiger Teilaspekt bei der Auswertung der  $\gamma$ -Spektren ist die Interferenz zwischen Linien verschiedener Nuklide. Wegen der beschränkten Auflösung der Detektoren ist es nicht immer möglich, die einzelnen Peaks klar zu trennen. Daher muss ein Mechanismus gefunden werden, der es ermöglicht, solche Interferenzen eindeutig zu erkennen und zu korrigieren. Dabei ist es wichtig, die Interferenz der  $\gamma$ -Linien zweier tatsächlich vorhandener Nuklide von einer fehlerhaften Zuordnung zu unterscheiden. Beide Situationen führen über alle Spektren und Peaks gesehen zu uneinheitlichen Einzelaktivitäten.

Trägt man für alle  $\gamma$ -Linien eines betrachteten Nuklids die berechneten Einzelaktivitäten gegen den Zeitpunkt der Messung auf, so ergibt sich typischerweise für beide Möglichkeiten ein verschiedenes Bild: bei vorhandener Interferenz sollten bei größeren Unterschieden der Halbwertszeiten die Ergebnisse über mehrere  $\gamma$ -Linien in einem Zeitfenster konsistent sein oder nur bei den ersten oder letzten Messungen für einzelne  $\gamma$ -Linien scheinbar zu hohe Aktivitäten liefern. Dagegen ergibt sich für nicht vorhandene Nuklide im Allgemeinen kein konsistentes Bild der einzelnen Aktivitäten. Die grafische Darstellung der Ergebnisse hilft bei dieser Unterscheidung.

Zur Verdeutlichung soll folgende Situation dienen: eine bestimmte  $\gamma$ -Linie ist überlagert von einer  $\gamma$ -Linie eines anderen Nuklids mit deutlich verschiedener Halbwertszeit. Dies bedeutet, dass die Peakflächen, die mehreren  $\gamma$ -Linien verschiedener Nuklide entsprechen, immer größer sind, als wenn sie ungestört wären. Hinzu kommt, dass sich die Beiträge in den Peaks aus beiden  $\gamma$ -Linien je nach dem Verhältnis der Halbwertszeiten verändern. Sei  $N_1$  das Nuklid, welches gerade ausgewertet wird und  $N_2$  ein überlagerndes Nuklid. Die durch die Bestrahlung induzierten Zählraten beider Nuklide zur Zeit  $t_{EOB}$  seien  $R_1^{(0)}$  und  $R_2^{(0)}$  gewesen.  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  sind die zugehörigen Zerfallskonstanten.

$$R_1(t) = R_1^{(0)} e^{-\lambda_1 t} \quad (4.14)$$

$$R_2(t) = R_2^{(0)} e^{-\lambda_2 t} \quad (4.15)$$

Wird die Zeit nun in Einheiten von  $\lambda_2^{-1}$  gemessen und  $\lambda = \lambda_1/\lambda_2$  als Verhältnis der Zerfallskonstanten gesetzt, ist die Zählrate in einem gemeinsamen Peak zum Zeitpunkt der Messung  $t$  unter Vernachlässigung der Übergangswahrscheinlichkeiten die Summe beider Zählraten:  $R(t) = R_1(t) + R_2(t) = R_1^{(0)} e^{-\lambda t} + R_2^{(0)} e^{-t}$ . Aus dieser Zählrate wird nun versucht, nach

$$\bar{R}_1^{(0)} = R(t) e^{\lambda t} = R_1^{(0)} + R_2^{(0)} e^{t(\lambda-1)} \quad (4.16)$$

$$\bar{R}_2^{(0)} = R(t) e^t = R_1^{(0)} e^{-t(\lambda-1)} + R_2^{(0)} \quad (4.17)$$

jeweils die vermeintlichen  $\bar{R}_1^{(0)}$  und  $\bar{R}_2^{(0)}$  zu bestimmen. Beide Ergebnisse stimmen bis auf einen weiteren Term mit dem wahren Wert überein. Falls ohne Beschränkung der Allgemeinheit  $(\lambda - 1) > 1$  ist, so verschwindet für  $t \rightarrow \infty$  in Gleichung (4.17) der zusätzliche Term und das Ergebnis wird korrekt. Auf der anderen Seite nähert sich für  $t \rightarrow 0$  in Gleichung (4.16) der Ausdruck der Summe beider Anfangszählraten an. Die Güte dieser beiden Näherungen hängt direkt von der Abweichung  $\lambda - 1$  ab. Das bedeutet, dass es in den Fällen, in denen eine Interferenz zwischen zwei Nukliden mit großen Unterschieden der Halbwertszeiten vorliegt, meistens beide Aktivitäten bestimmt werden können, auch wenn innerhalb eines Spektrums keine unabhängigen Aktivitäten bestimmt werden können. Dazu wird zunächst die in späteren Messungen nur wenig gestörte Aktivität des längerlebigen Nuklids bestimmt, anschließend aus der früheren Messungen die des kürzerlebigen bestimmt und mit der ersteren korrigiert.

Dieses Beispiel soll verdeutlichen, dass bei der Auswertung der komplexen  $\gamma$ -Spektren vielfältige Komplikationen auftreten, die aber mit geeigneten Werkzeugen gelöst werden können. Grundlage für alle Aspekte dieser ergebnisorientierten Qualitätssicherung ist das Ziel, aus möglichst vielen Messungen auf verschiedenen Detektoren für ein Nuklid mit mehreren  $\gamma$ -Linien konsistente Einzelaktivitäten zu bestimmen, die trotz unter Umständen größerer individueller Unsicherheiten im Gesamtergebnis eine befriedigende Genauigkeit gewährleisten.

### **4.5.2. Fazit zur Qualitätssicherung**

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die Auswertung durch die im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Methoden zur visuellen Unterstützung nicht nur zuverlässigere Ergebnisse ermöglicht, sondern auch eventuell vorhandene Unstimmigkeiten der Methode oder Messtechnik unmittelbar sichtbar macht. Zusammen mit einer strengen Nachvollziehbarkeit und durchgängigen Protokollierung aller Schritte erfüllt sie alle genannten Ansprüche der Qualitätssicherung.

## 5. Experimentelle Ergebnisse

Insgesamt wurden im Rahmen dieser Arbeit 20 Stacks bestrahlt und retrospektiv die Flussdichten der Protonen bestimmt. Für 6 Experimente mit insgesamt 74 Proben wurden etwa 1000 Spektren komplett ausgewertet (dabei wurden fast 150.000 Peaks gefunden). Es wurden mehr als 3000 Spektren der übrigen Proben gemessen und zur Auswertung vorbereitet. Als Ergebnis liegen nun über 660 neue Wirkungsquerschnitte vor, deren Werte sich aus der Analyse von fast 11000 einzelnen Aktivitäten der Produktnuklide ergaben.

Die experimentellen Ergebnisse werden in 3 Abschnitten vorgestellt: zunächst erfolgt eine Diskussion zur Halbwertszeit des Nuklids  $^{205}\text{Bi}$ . Der Literaturwert aus den 60er Jahren führt zu inkonsistenten Ergebnissen und es wurde daher eine Neubestimmung vorgenommen. Die ermittelte Abweichung beträgt etwa 3%. Diese Diskrepanz ist nach den Ausführungen in der Fehlerdiskussion erheblich und muss in zukünftigen Auswertungen berücksichtigt werden.

Anschließend werden die Ergebnisse der Flussdichtebestimmungen diskutiert und es erfolgt eine Analyse der verwendeten Monitoranregungsfunktionen. Es zeigt sich, dass für die Ermittlung zukünftiger Flussdichten weitere Untersuchungen der Monitorreaktionen notwendig sind, da auch mit der neuen Evaluation [TTG<sup>+</sup>01] der Reaktionen  $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{65}\text{Zn}$  und  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$  nicht alle Widersprüche beseitigt sind. Dessen ungeachtet wird gezeigt, dass auch bei den derzeit bestehenden Unsicherheiten die Flussdichten zuverlässig bestimmt werden können.

Dies zeigt auch die hervorragende Konsistenz zwischen den aus verschiedenen, unabhängig voneinander durchgeführten Bestrahlungsexperimenten bestimmten Wir-

kungsquerschnitten aus Blei und Bismut. Eine Auswahl dieser größtenteils erstmalig bestimmten Wirkungsquerschnitte wird im dritten Teil diskutiert.

### 5.1. Bestimmung der Halbwertszeit von $^{205}\text{Bi}$

#### 5.1.1. Hinweise auf eine fehlerhafte Halbwertszeit

Während der Bestimmung eines Wirkungsquerschnitts erfolgt eine visuelle Kontrolle der Aktivitäten, die sich in den Messungen aus den verschiedenen  $\gamma$ -Linien des Nuklids ergeben. Bei einer Auftragung der bereits zerfallskorrigierten Aktivitäten unter Verwendung der bis dahin bekannten Halbwertszeit gegen den Zeitpunkt der Messung nach Bestrahlungsende wurde für das Nuklide  $^{205}\text{Bi}$  eine abnehmende Tendenz der berechneten Aktivitäten unabhängig von der betrachteten  $\gamma$ -Linie und der untersuchten Probe gefunden. Es wurde daher eine Analyse der Zerfallskurven in mehreren Messungen vorgenommen, um die Konsistenz der beobachteten Halbwertszeit zu überprüfen.

#### 5.1.2. Literaturdaten

In allen verfügbaren Sammlungen [Wes00, RW83, FS96, DK98, PKS95] für nukleare Daten fand sich der gleiche Wert von 15.31 Tagen als Halbwertszeit des  $^{205}\text{Bi}$  mit einer Unsicherheit von 0.04 Tagen. Dieser Wert stammt nach Angaben der ENSDF-Datenbank aus [BLPL61] auf Grundlage von [FH58, KT51] und ist damit 40 Jahre alt. In jüngerer Literatur finden sich keine Hinweise auf eine erneute Bestimmung der Halbwertszeit.

#### 5.1.3. Verfahren zur Bestimmung der Halbwertszeit

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Vielzahl von Blei- und Bismutproben bestrahlt, wobei als eines der dominierenden Nuklide  $^{205}\text{Bi}$  produziert wird. Da, abgesehen von der Halbwertszeit, die nuklearen Daten von  $^{205}\text{Bi}$  auch in jüngerer Zeit kontinuierlich gemessen wurden und damit als hinreichend gesichert gelten können

(z. B. [BOF<sup>+</sup>86, HGB<sup>+</sup>83, HWF<sup>+</sup>83, Lon82, BFZ<sup>+</sup>81]), kann aus dem Abfall der Zählrate nach Gleichung (3.7) direkt die Halbwertszeit bestimmt werden. Dies geschieht durch Anpassung einer Geraden in doppelt-logarithmischer Darstellung dieser Aktivität gegen die Zeit nach Bestrahlungsende.

Insgesamt wurden mehr als 1100 einzelne Aktivitäten nach Gleichung (3.7) bestimmt und damit in 118 unabhängigen Fits die Halbwertszeit ermittelt. Dabei wurden 12 unterschiedliche Blei- und Bismutproben berücksichtigt und 13 verschiedene  $\gamma$ -Linien des  $^{205}\text{Bi}$  mit Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen 1.69% und 32.4% genutzt. Für jede einzelne Anpassung der Geraden standen etwa 10 einzelne Aktivitäten zur Verfügung.

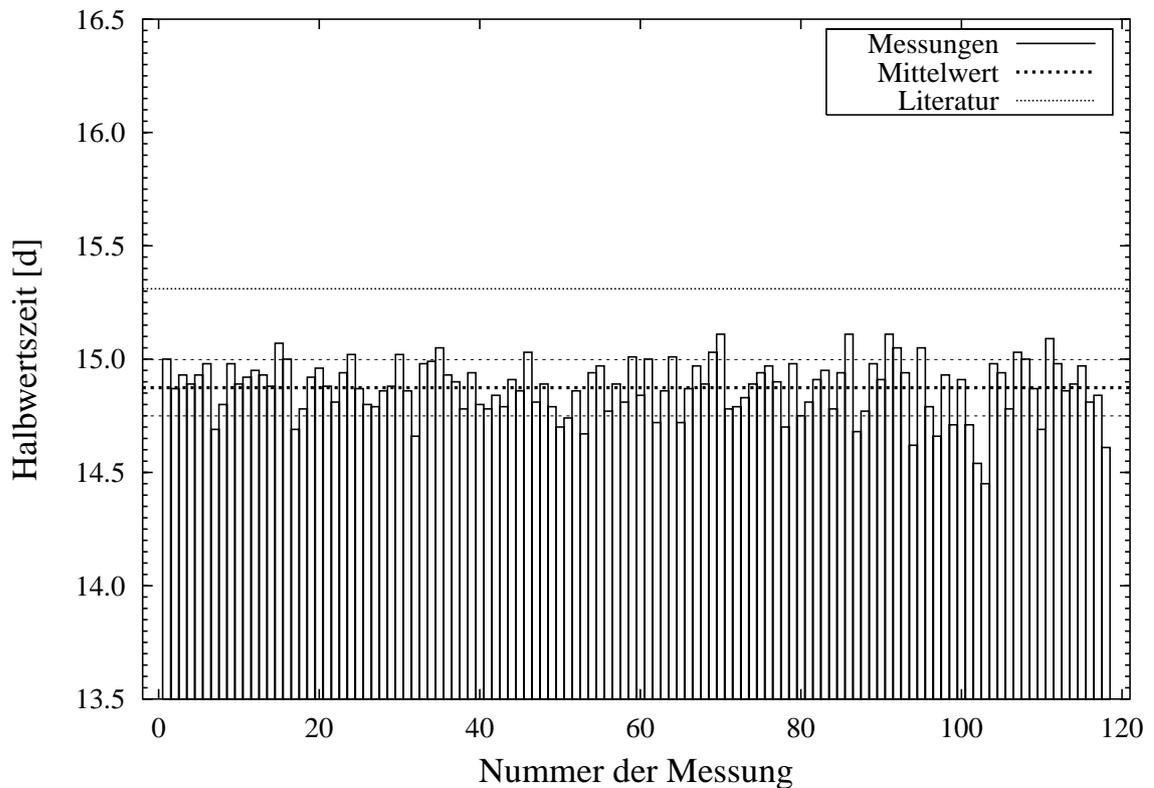
#### 5.1.4. Ergebnis der Neubestimmung

In Abbildung 5.1 sind alle Ergebnisse aufgetragen, wobei die einzelnen Werte nach absteigender Intensität der benutzten  $\gamma$ -Linien sortiert sind. Die Streuung der Messwerte liegt vor allem an der begrenzten Anzahl von Messungen der einzelnen Proben. Für eine noch genauere Bestimmung der Halbwertszeit sind sicher mehr als 20 Messungen der gleichen Probe mit genau geplanten Zeitabständen notwendig. Dies erfolgte in dieser Arbeit nicht, weil die Durchführung der Messungen nicht auf die möglichst genaue Ermittlung der Halbwertszeit zielte. Messungen, die sich speziell diesem Ziel widmen, werden zur Zeit durchgeführt. Als Ergebnis der Mittelwertbildung der Einzelbestimmungen ergibt sich für die Halbwertszeit des  $^{205}\text{Bi}$ :

$$T_{1/2} = (14.87 \pm 0.12) \text{ Tage} \quad (5.1)$$

Dies entspricht einer Unsicherheit von 0.8%. In weiteren Messungen wird die Datenbasis zur Bestimmung dieser Halbwertszeit weiter ausgebaut werden.

In einer analog durchgeführten Analyse für  $^{206}\text{Bi}$  konnte keine Abweichung vom Literaturwert festgestellt werden. Insgesamt kann dieses unerwartete Ergebnis als weiteres Indiz für die Qualität der durchgeführten Auswertungen gelten, da trotz der komplexen Analyse der Spektren eine inkonsistente Basis der grundlegenden nuklearen Daten aufgedeckt und korrigiert werden konnte.



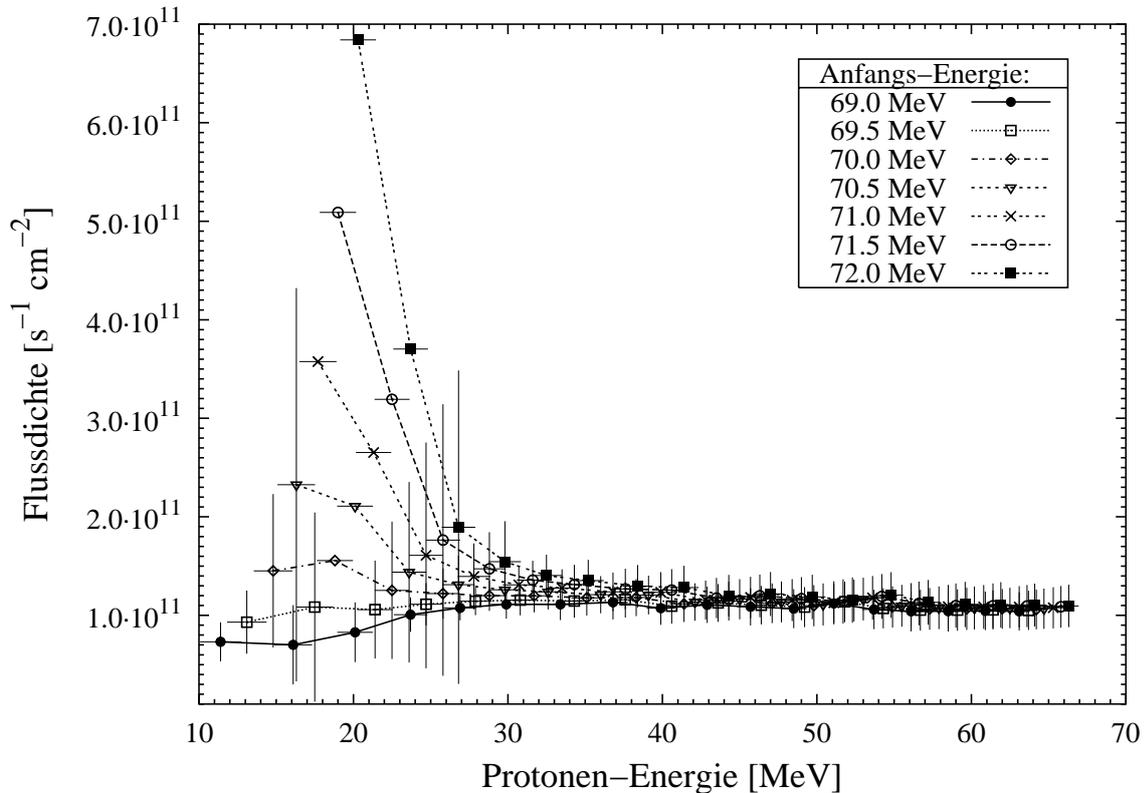
**Abbildung 5.1.:** Bestimmung der Halbwertszeit von  $^{205}\text{Bi}$  in unabhängigen Einzelmessungen und dem ermittelten Mittelwert mit der Standardabweichung im Vergleich zum Literaturwert.

## 5.2. Bestimmung der Flussdichten

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Flussdichtenbestimmung diskutiert. Dabei wird auf die Einflüsse der Einschussenergie und der zugrunde liegenden Monitorwirkungsquerschnitte eingegangen. Anschließend werden die Ergebnisse der Flussdichten für die ausgewerteten Bestrahlungen diskutiert. Eine komplette Übersicht aller Flussdichten für die Experimente, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden, findet sich in Anhang C auf Seite 135.

### 5.2.1. Betrachtungen zur Einschussenergie

Bei der Bestimmung der Protonenflussdichte kommt der Genauigkeit der berechneten Protonenenergie gerade für Energien unterhalb von etwa 50 MeV eine große Rolle



**Abbildung 5.2.:** Varianten der angenommenen anfänglichen Protonenenergie für die Bestrahlung Zuer0B und deren Einfluss auf die sich ergebenden Flussdichten. Die Fehlerangaben wurden weggelassen, wenn die Unsicherheiten mehr als 80 % betragen.

zu, da die Anregungsfunktionen der Monitorreaktionen hier besonders große Steigungen besitzen (Abbildungen 4.7 und 4.8). Für die Experimente Zuer0A und Zuer0B wurde ursprünglich von einer projektierten Energie der Strahlprotonen von 72 MeV ausgegangen. Bei der Auswertung der damit erzielten einzelnen Flussdichten in den Monitorfolien ergaben sich jedoch Schwierigkeiten, einen konsistenten Gesamtfluss zu ermitteln. In Abbildung 5.2 wird dies verdeutlicht. Dargestellt sind jeweils die aus der  $^{65}\text{Zn}$  Aktivität in den einzelnen Kupferfolien ermittelten Flussdichten für verschiedene angenommene Anfangsenergien der Protonen.

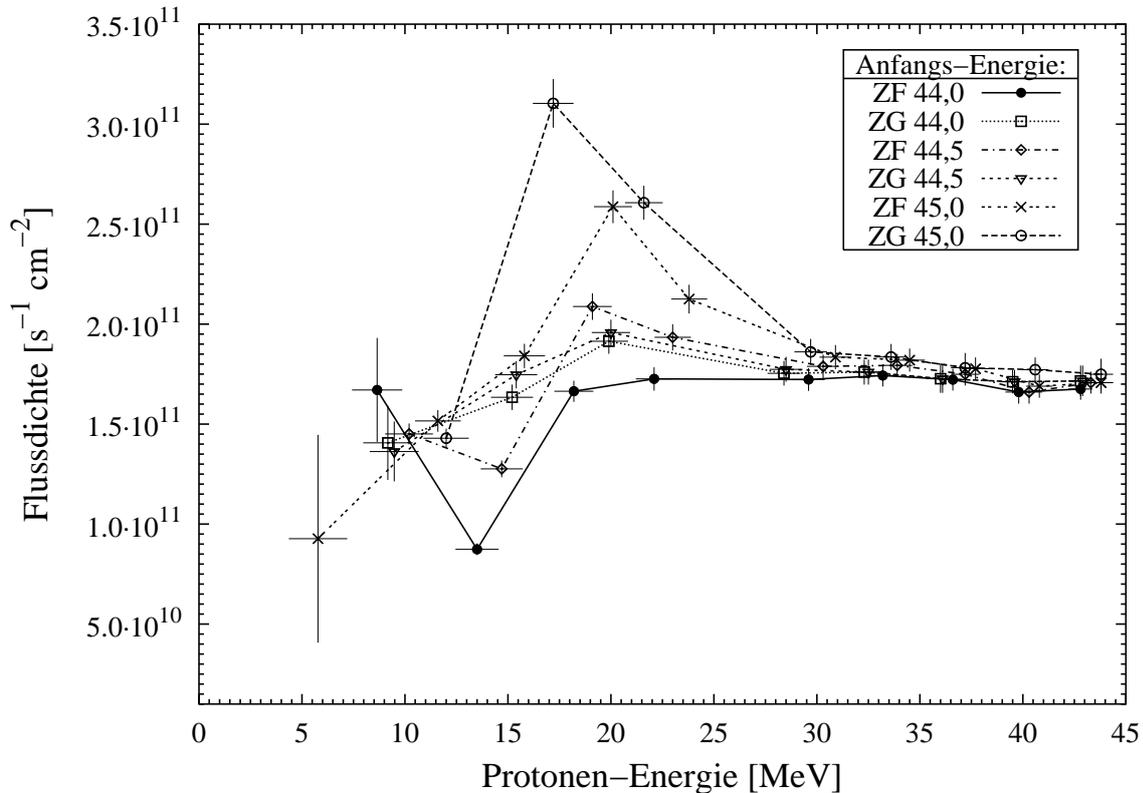
Für die angegebene Einschussenergie von 72 MeV ergibt sich in den vorderen Folien eine einheitliche Flussdichte, aber der unphysikalische Anstieg bei niedrigeren Energien tiefer im Stack ist offensichtlich. Zwar liegt dieser Anstieg auch bei Annahme

einer konstanten Flussdichte noch im Rahmen der Fehler, dennoch zeigen verschiedene Bremsrechnungen, bei denen jeweils die Anfangsenergie der Protonen in Schritten von 0.5 MeV variiert wurde, mit sinkender Einschussenergie einen immer besseren Verlauf und legen Nahe, dass als primäre Energie der Protonen Werte zwischen 69.5 und 70.5 MeV realistischer als 72 MeV sind. Die daraufhin erfolgte Überprüfung der Beschleunigerprotokolle ergab als tatsächliche Energie einen Wert von 70.5 MeV, welches zu einer Übereinstimmung mit den Ergebnissen dieser Betrachtung führt. Diese starke Abhängigkeit der Ergebnisse von der angenommenen Energie der Protonen innerhalb des Stacks zeigt sich auch bei anderen Bestrahlungen dieser Arbeit.

Auch bei leicht abweichenden Angaben für die Einschussenergie kann eine zuverlässige Flussdichte für die Experiment bestimmt werden, da für diese Berechnung nur die vorderen Folien verwendet werden. Diese besitzen die geringsten Unsicherheiten der Protonenenergie und damit auch geringere Unsicherheiten der Monitorwirkungsquerschnitte. Zum zweiten sind für diese Energien die Steigungen der Monitoranregungsfunktionen geringer.

Ein ähnliches Bild ergibt sich bei der Auswertung der Experimente Zuer0F und Zuer0G. Da diese beiden Bestrahlungen nacheinander mit den gleichen Parametern durchgeführt wurden, ist eine gemeinsame Flussbestimmung möglich. Bei einer Variation der primären Protonenenergie von den bestätigten 45 MeV zu niedrigeren Werten hin zeigt sich analog zu Zuer0B ein konsistenteres Bild mit Energien, die von den Angaben der Betreiber nach unten abweichen. In Abbildung 5.3 ist diese Abhängigkeit gezeigt. Eine endgültige Klärung der Unstimmigkeiten zwischen den angegebenen Energien und den ermittelten Flussdichten steht noch aus. Eine fehlerhafte Messung am Beschleuniger selbst scheint nach Angaben der Operateure unwahrscheinlich.

Als Konsequenz der Ergebnisse dieses Abschnitts werden die Flussdichtebestimmungen der Bestrahlungsexperimente dieser Arbeit nur über die vorderen Folien durchgeführt.

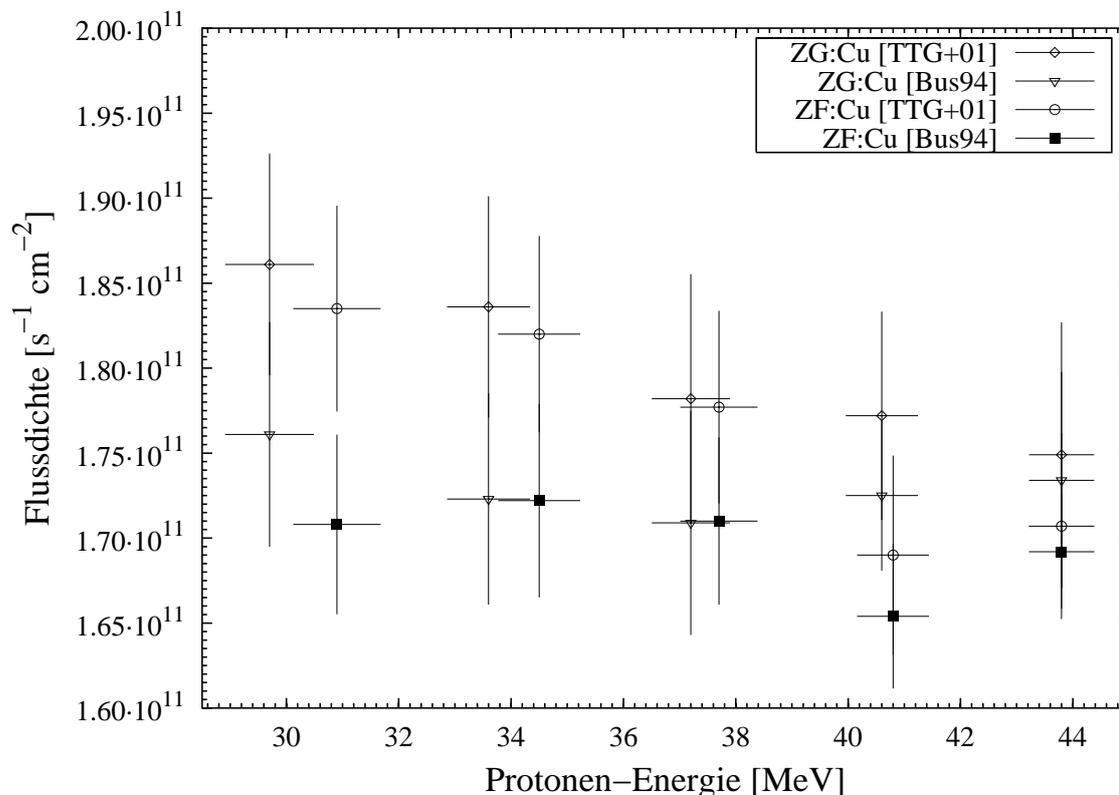


**Abbildung 5.3.:** Varianten der angenommenen anfänglichen Protonenenergie für die Bestrahlungen Zuer0F und Zuer0G und deren Einfluss auf die sich ergebenden Flüsse.

### 5.2.2. Einfluss der Monitorwirkungsquerschnitte

Wie bereits in der Beschreibung der Flussbestimmung angedeutet, lagen dieser Arbeit mehrere alternative Anregungsfunktionen der Monitorreaktionen vor. Es konnte dabei auch der Datensatz der IAEA [TTG<sup>+</sup>01] mit in die Betrachtungen einbezogen werden.

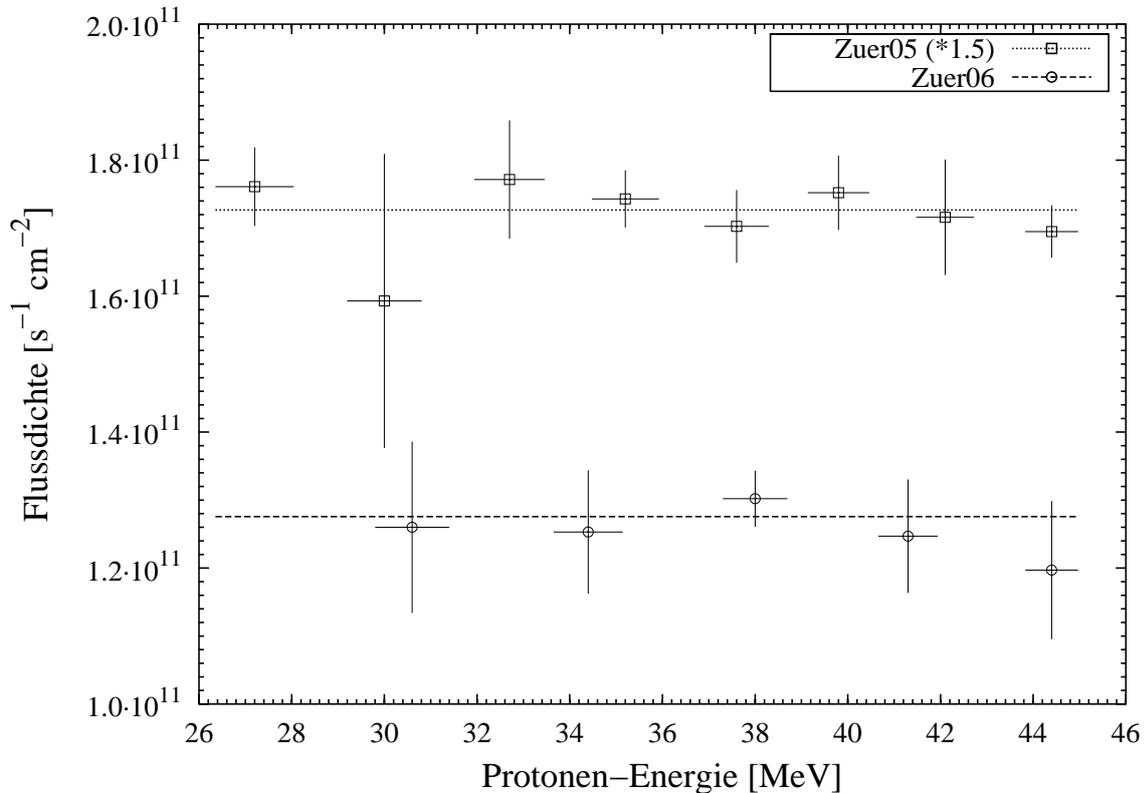
Die Bestimmung der Flussdichten für die Experimente Zuer0F und Zuer0G über die Kupferfolien zeigen deutliche Diskrepanzen zwischen den neueren Daten [TTG<sup>+</sup>01] und den älteren, bisher verwendeten [Bus94]. Dies äußert sich neben absoluten Unterschieden gegenüber den Ergebnissen aus den Aluminiumfolien (Abbildung 5.8) auch in einer leicht ansteigenden Tendenz der nach [TTG<sup>+</sup>01] berechneten Flussdichten. Dies wird in Abbildung 5.4 veranschaulicht. Bis auf zwei im Rahmen der Fehler liegender Ausreißer bei 29.7 und 40.8 MeV geben die Daten mittels der Anregungsfunk-



**Abbildung 5.4.:** Vergleich der Flussdichten für Zuer0F und Zuer0G unter Verwendung verschiedener Anregungsfunktionen der Monitorreaktionen.

tion nach [Bus94] einen konstanten Verlauf wieder, wohingegen die Ergebnisse der neueren Evaluation eine ansteigende Flussdichte im hinteren Teil des Stacks zeigen. Da eine zusätzliche Produktion aus sekundären Protonen unwahrscheinlich ist, kann dieser Effekt nur auf die verwendeten Monitoranregungsfunktionen zurückgeführt werden. Es muss aber festgehalten werden, dass für eine eindeutige Beurteilung der Güte der beiden verwendeten Anregungsfunktionen die Unsicherheit der Protonenenergie innerhalb der Bestrahlungsexperimente dieser Arbeit zu gross ist und getrennt untersucht werden muss.

Ein ähnlicher scheinbarer Anstieg der ermittelten Flussdichten nach den neueren Monitorwirkungsquerschnitten zeigt sich auch bei den Experimenten Zuer0A und Zuer0B. Daher und in Konsistenz mit früheren Arbeiten unserer Abteilung wurden alle Flussdichten dieser Arbeit mit den bisherigen Wirkungsquerschnitten für die Produktion von <sup>65</sup>Zn bestimmt. Insgesamt wird auch bei einer faktisch geringeren



**Abbildung 5.5.:** Ergebnisse der Flussdichten für Zuer05 und Zuer06 aus den strahlseitigen Monitorfolien. Das Ergebnis der fehlergewichteten Mittelwerte ist jeweils als horizontale  $\gamma$ -Linie dargestellt. Zur deutlichen Trennung wurden die Werte für Zuer05 um 50% verschoben.

Unsicherheit des Mittelwertes in dieser Arbeit ein Minimum der Unsicherheit der gemittelten Flussdichte von 5 % angenommen.

### 5.2.3. Die Flussdichten von Zuer05 und Zuer06

Die Protonenflussdichte im Experiment Zuer05 beträgt  $1.15 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , für das Experiment Zuer06 wurde ein Wert von  $1.28 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  bestimmt. Als absolute Unsicherheit wird 5 % angenommen. In beiden Experimenten kamen ausschließlich Kupferfolien zur Flussbestimmung zum Einsatz. In Abbildung 5.5 sind die Ergebnisse der zur Auswertung herangezogenen Einzelwerte aufgetragen. Aufgrund relativ weniger Messungen konnten die Aktivitäten hier nur mit vergleichsweise geringer Genauigkeit bestimmt werden.

#### 5.2.4. Die Flussdichte von Zuer0A

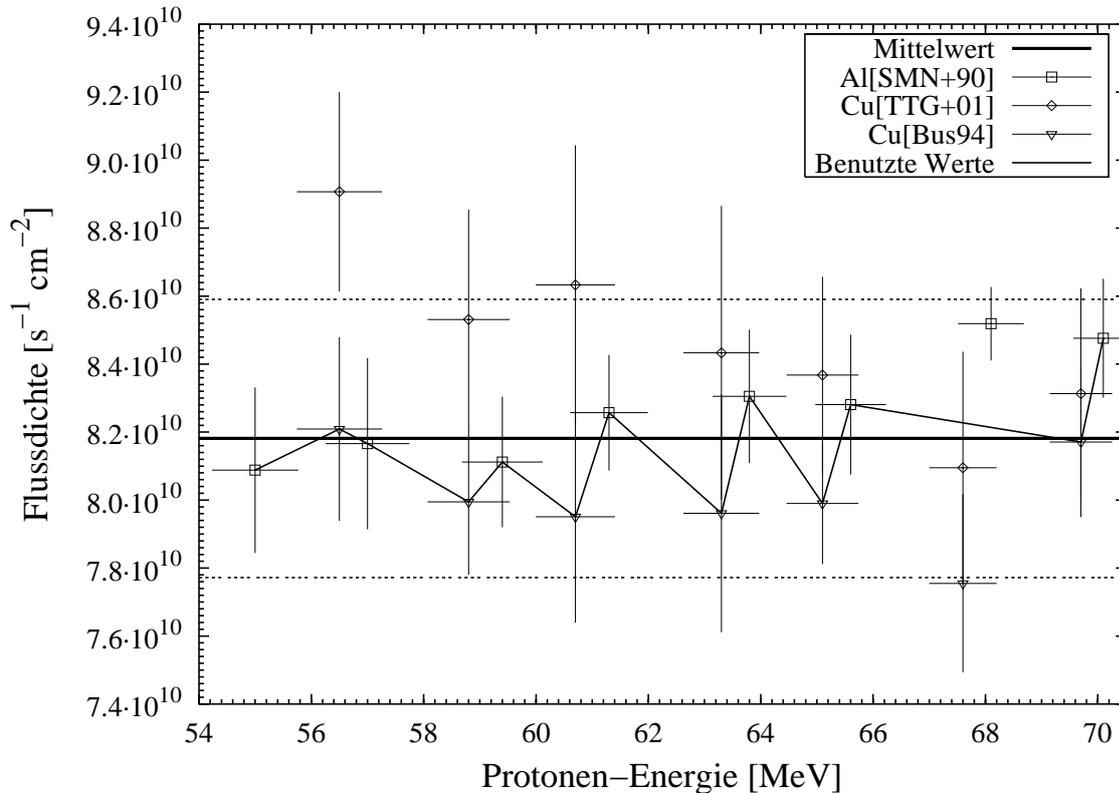
Die Flussdichte für das Experiment Zuer0A beträgt  $8.18 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Als absolute Unsicherheit wird 5 % angenommen. In Abbildung 5.6 sind die Einzelergebnisse der aus den Aluminium- und Kupferfolien bestimmten Flussdichten gegen die Energie im Stack aufgetragen. Zum Vergleich mit den tatsächlich ausgewerteten Flussdichten aus den einzelnen Folien sind auch die Ergebnisse dargestellt, die aus den gemessenen Aktivitäten des  $^{65}\text{Zn}$  mit der neueren Anregungsfunktion gewonnen wurden. Wie auch bei den anderen Experimenten deuten diese auf einen im Stack ansteigenden Protonenfluss hin, der aber bei anderen Produkten nicht beobachtet werden konnte und daher unwahrscheinlich erscheint. Die Flussdichten aus der Produktion von  $^{22}\text{Na}$  in den Aluminiumfolien stimmen bei diesem Experiment besser mit den Ergebnissen aus den Kupferfolien überein, weil im Energiebereich des Experiments Zuer0A die Anregungsfunktion  $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$  keine so große Steigung besitzt und daher die Monitorwirkungsquerschnitte mit höherer Genauigkeit zu bestimmen sind. Die angenommene Unsicherheit der Flussdichte von 5 % bildet eine obere Grenze.

#### 5.2.5. Die Flussdichte von Zuer0B

Für das Experiment Zuer0B beträgt die Flussdichte  $1.02 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  mit einer Unsicherheit von 5 %. Die Darstellung der Einzelergebnisse in Abbildung 5.7 zeigt ein ähnliches Bild wie beim Experiment Zuer0A. Die Daten nach der neueren Anregungsfunktion für  $^{nat}\text{Cu}(p,xn)^{65}\text{Zn}$  zeigen wieder einen Anstieg zu niedrigeren Energien. Wiederum ist die Annahme von 5 % eine obere Grenze der Flussdichtenunsicherheit.

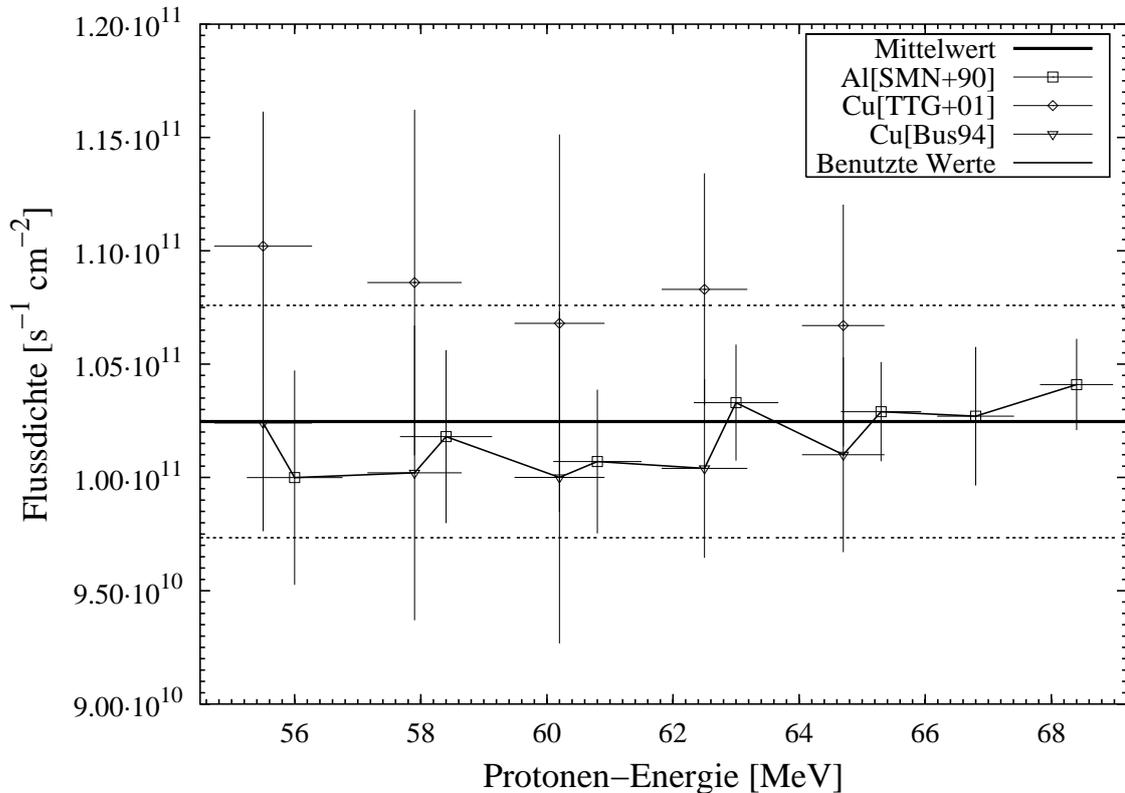
#### 5.2.6. Die Flussdichte von Zuer0F und Zuer0G

Für beide Experimente wurde eine Protonenflussdichte von  $1.66 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  mit einer Unsicherheit von 5 % ermittelt. Für beide Bestrahlungsexperimente wird die gleiche Energie des Protonenstrahls von 45.0 MeV angenommen. Wegen der bereits dargestellten Unsicherheit dieser Anfangsenergie werden auch hier nur die vorderen



**Abbildung 5.6.:** Ergebnisse der Flussdichten für Zuer0A aus den strahlseitigen Monitorfolien. Die zur Mittelwertbildung herangezogenen Folien sind verbunden, das Ergebnis des fehlergewichteten Mittelwerts ist fett dargestellt.

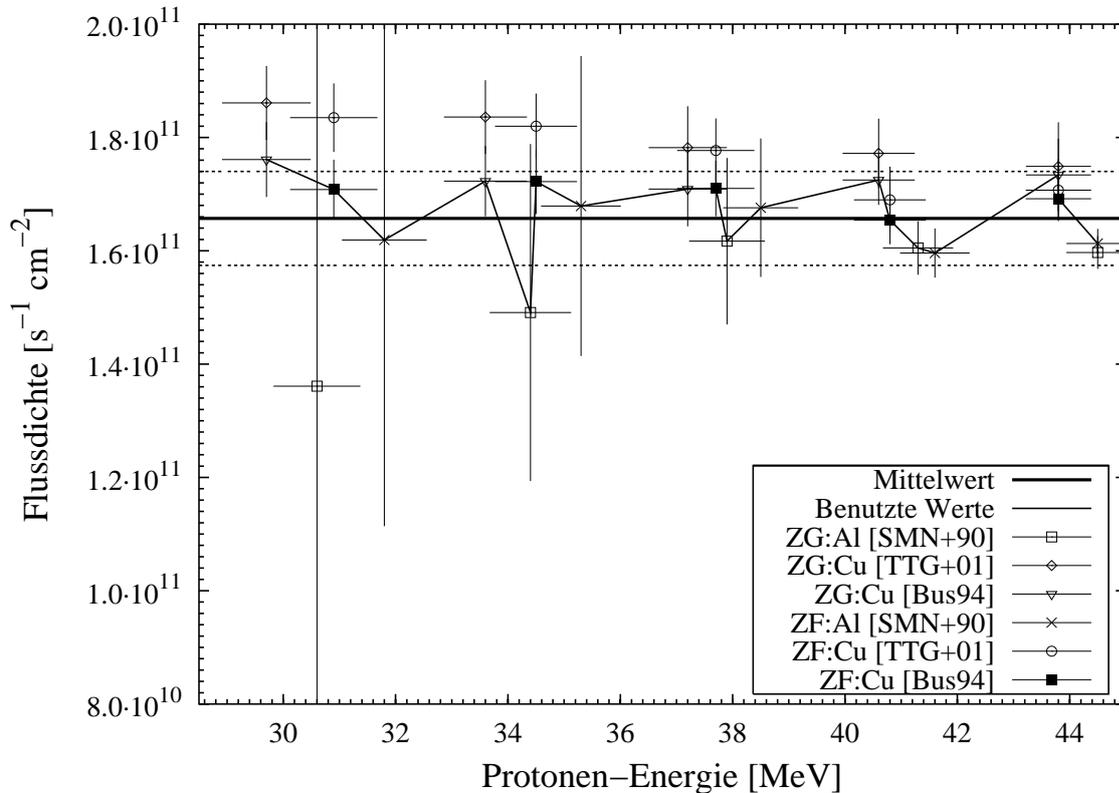
Kupferfolien zur Flussbestimmung herangezogen. Die Ergebnisse aller einzelnen Folien sind in Abbildung 5.8 gezeigt. Obgleich die Ergebnisse aus diesen Aluminium- und Kupferfolien zumeist innerhalb der Fehler konsistent sind, fällt eine systematische Diskrepanz zwischen den Flussdichten, die aus der Produktion des  $^{22}\text{Na}$  bestimmt wurden, und jenen aus der Produktion von  $^{65}\text{Zn}$  auf. Diese ist besonders für das Experiment Zuer0G auffällig. Die großen Unsicherheiten der Einzelergebnisse macht eine Bewertung schwierig. Die Flussdichten aus den Ergebnissen der Kupferfolien nach den bisher verwendeten Wirkungsquerschnitten [Bus94] sind wiederum eindeutig in größerer Übereinstimmung mit den Werten aus den Aluminiumfolien, als die nach [TTG<sup>+</sup>01].



**Abbildung 5.7.:** Ergebnisse der Flussdichten für Zuer0B aus den strahlseitigen Monitorfolien. Die zur Mittelwertbildung herangezogenen Folien sind verbunden, das Ergebnis des fehlergewichteten Mittelwerts ist fett dargestellt.

Die ebenfalls denkbare Bestimmung der Flussdichten über kurzlebige Produkte in Kupfer, wie z. B.  $^{62}\text{Zn}$ , konnte wegen der sehr großen Anzahl zu messender Proben nach Bestrahlungsende nicht erfolgen.

Zusammenfassend sind die Methoden für die Bestimmung der Flussdichte für Bestrahlungen mit Protonenenergien von weniger als 40 MeV verbesserungswürdig. Eine endgültige Klärung der Anregungsfunktionen für die Produktion von  $^{22}\text{Na}$  in Aluminium und  $^{65}\text{Zn}$  in Kupfer kann bei den hier eingesetzten schweren Targetmaterialien nicht erfolgen. Bestrahlungsexperimente, die explizit diesem Ziel dienen werden, sind bereits in Planung.



**Abbildung 5.8.:** Ergebnisse der Flussdichten für Zuer0F und Zuer0G aus den strahlseitigen Monitorfolien. Die zur Mittelwertbildung herangezogenen Folien sind verbunden, das Ergebnis des fehlergewichteten Mittelwerts ist fett dargestellt.

### 5.3. Ergebnisse aus dem Targetelement Blei

Bei der Vielzahl der in dieser Arbeit bestimmten Wirkungsquerschnitte kann keine komplette Darstellung sämtlicher Anregungsfunktionen gegeben werden. Alle Wirkungsquerschnitte finden sich jedoch tabellarisch im Anhang A. An dieser Stelle sollen charakteristische Beispiele diskutiert werden. Dabei erfolgt zunächst eine Übersicht der systematischen Ergebnisse, anschließend eine Diskussion einzelner Reaktionen im Vergleich mit den Daten anderer Autoren. Der Vergleich mit den Ergebnissen der Modellrechnungen erfolgt später in einem gesonderten Kapitel.

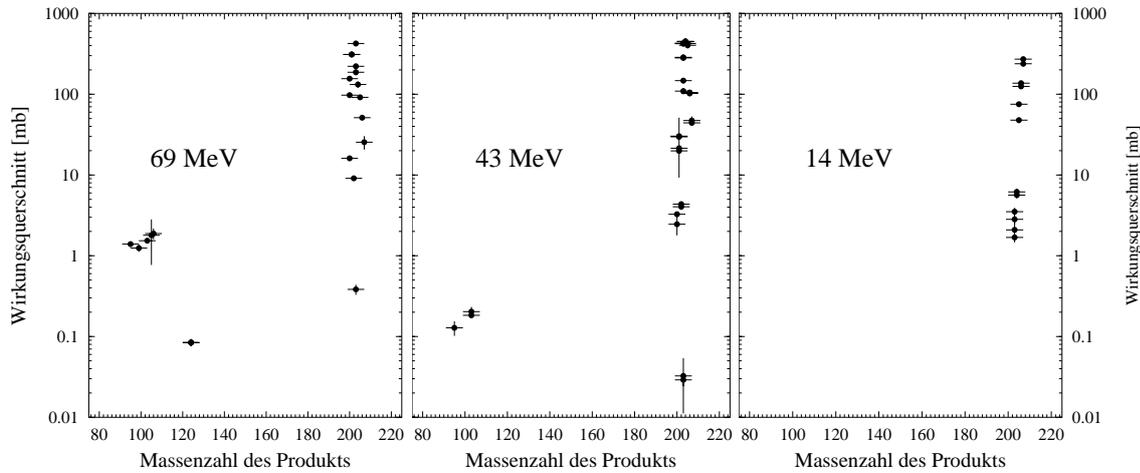
Zur Verdeutlichung des Verlaufs der Anregungsfunktionen ist in vielen Fällen eine Hilfslinie eingetragen, die in anderen Darstellungen auch als Vergleich dient. Falls diese in den Diagrammen nicht explizit bezeichnet ist, handelt es sich um eine Aus-

gleichskurve für die bezeichnete Reaktion auf der Basis der Werte dieser Arbeit und den Werten nach Gloris et al. [GMS<sup>+</sup>01]. Diese Linie ergibt sich aus einer Approximation der Daten mit kubischen Splines mittels eines Fits durch das Programm GNUPLOT [WK00]. Obwohl für die betrachteten Reaktionen ein stetiger Verlauf der Anregungsfunktionen und deren Ableitungen wahrscheinlich ist, geben gerade lokale Extrema dieser Hilfskurven die Daten nicht zwangsläufig quantitativ wieder.

### 5.3.1. Systematik der Restkernverteilung

Eine vollständige Beschreibung der Restkernverteilung ist mit den Mitteln dieser Arbeit nicht möglich. Dies liegt vor allem an der  $\gamma$ -spektrometrischen Erfassung der Produkte. Einige Nuklide besitzen keine detektierbaren  $\gamma$ -Linien, andere Nuklide haben eine so große Halbwertszeit, dass nur eine sehr geringe Bildung zu erwarten ist. Dies sind vor allem  $^{204}\text{Tl}$ ,  $^{205}\text{Pb}$  und  $^{208}\text{Bi}$ , deren Messung für eine vollständige Erfassung der Reaktionen mit wenigen emittierten Nukleonen wünschenswert wäre. Weitere Nuklide konnten wegen zu kurzer Halbwertszeit im Rahmen dieser Arbeit nicht gemessen werden. Da oftmals die Messungen erst 10-20 Stunden nach dem Ende der Bestrahlung erfolgen konnten, liegt die untere Grenze für die Halbwertszeit der erfassbaren Nuklide bei etwa 1 bis 2 Stunden. Eine sofortige Messung der bestrahlten Proben ist wegen der auswärtigen Bestrahlung nicht möglich gewesen.

Zur systematischen Betrachtung von Wirkungsquerschnitten bieten sich verschiedene Darstellungen an. Neben der Anregungsfunktion, die in den nachfolgenden Abschnitten die Abhängigkeit einer bestimmten Reaktion von der Protonenenergie zeigt, lassen sich für feste Energien entweder die Wirkungsquerschnitte verschiedener Produkte eines gleichen Targets oder aber die Wirkungsquerschnitte eines bestimmten Produktes aus verschiedenen Targetelementen in Abhängigkeit der Massendifferenz auftragen. In Abbildung 5.9 ist dies für das Targetelement Blei bei Energien von 69, 43 und 14 MeV gezeigt. Man erkennt die targetnahen Produkte, die überwiegend durch die Abgabe mehrerer Neutronen und weniger Protonen gebildet werden und bei etwa der halben Targetmasse die Spaltprodukte. Aufgrund nur relativ weniger eindeutig identifizierbarer Spaltprodukte lässt sich aus den vorliegenden Daten keine Aussage zur Form der Spaltausbeute machen.



**Abbildung 5.9.:** Systematik der Restkernverteilung im Blei für Protonenenergien von 69, 43 und 14 MeV. In der mittleren Abbildung (43 MeV) sind einige Nuklide mit mehreren Werten eingetragen, da bei dieser Energie eine zweite Probe vorlag. In den beiden anderen Abbildungen handelt es sich jeweils um die Ergebnisse aus einer Folie.

In den Abbildungen für 69 und 43 MeV fallen die Werte des  $^{203}\text{Hg}$  auf. Die Wirkungsquerschnitte liegen weit unter den anderer Produkte dieser Masse und sogar unter denen der meisten Spaltprodukte, weil bei diesen Energien wegen der Coulomb-Schwelle bevorzugt Neutronen und kaum Protonen emittiert werden. Die Bildung der Thallium Isotope findet noch über  $\alpha$ -Emission statt und fällt daher nicht ganz so stark ab. Zum zweiten erfolgt die Produktion des  $^{203}\text{Hg}$  praktisch direkt, da ein möglicher Progenitor erst gar nicht gebildet wird.

### 5.3.2. (p,xn) Reaktionen

Der dominierende Reaktionskanal im hier betrachteten Energiebereich ist die (p,xn)-Reaktion. In fast allen Proben konnten entsprechende Produkte bis an die jeweiligen Energieschwellen nachgewiesen werden. Bei diesen Reaktionen verbleibt das Projektil im Kern und der Kern regt sich nach der Bildung des Compound-Zustands bei den hier betrachteten Energien überwiegend durch Neutronen-Evaporation ab. Die Anregungsfunktionen dieser Reaktionen zeigen einen typischen Verlauf: ein starkes Ansteigen nach der Schwelle, anschließend ein ausgeprägtes Verdampfungsmaximum, gefolgt von einem stetigen Abfall der Wirkungsquerschnitte. Dieser Abfall resultiert

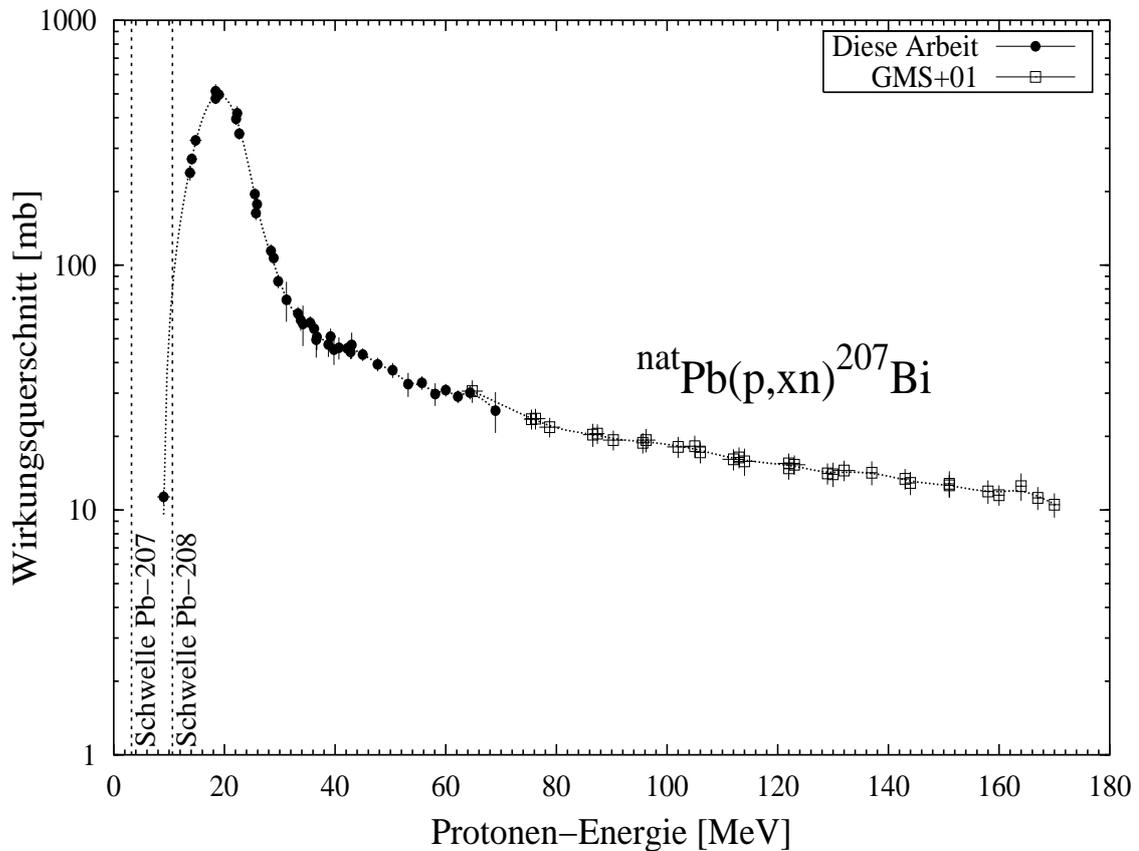
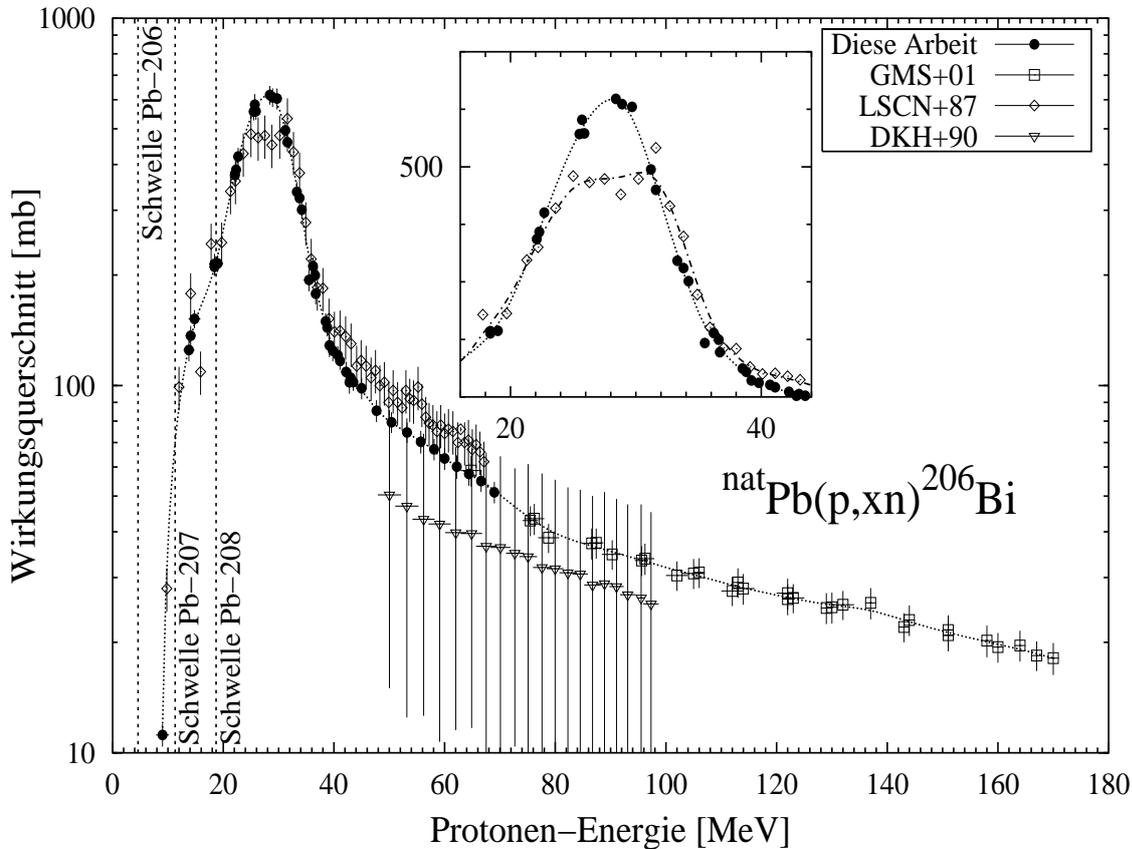


Abbildung 5.10.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,xn){}^{207}\text{Bi}$

zum einen aus der Öffnung weiterer Reaktionskanäle, die mit steigender Energie in zunehmender Konkurrenz stehen. Andererseits erfolgt bei höheren Energien einhergehend mit einer kleineren Wellenlänge der Projektile eher eine direkte Wechselwirkung mit einzelnen Nukleonen des Targets, was zu ausgeprägten Kaskaden innerhalb des Kerns führt. Die (p,xn)-Reaktionen finden bei diesen höheren Energien im Randbereich des Targetkerns statt, wobei die Wahrscheinlichkeit gegenüber einem hauptsächlich zentralen Stoß zunehmend kleiner wird. Abbildung 5.10 zeigt mit der Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,xn){}^{207}\text{Bi}$  das erste Beispiel. Die Bildung des Produkts ist nur aus den Isotopen  ${}^{208}\text{Pb}$  und  ${}^{207}\text{Pb}$  möglich, wobei die Schwellenenergien für diese Reaktionen jeweils als senkrechte Linien eingetragen sind. Eine Trennung der Anteile der beiden Isotope ist mit den experimentellen Daten dieser Arbeit nicht eindeutig, diese zeigen sich aber in den Modellrechnungen und stehen im Einklang mit den soeben



**Abbildung 5.11.:** Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,xn){}^{206}\text{Bi}$

beschriebenen Mechanismen. Das Maximum der Anregungsfunktion liegt bei etwa 19 MeV und damit 8.4 MeV über der Schwellenenergie von 10.6 MeV

Obwohl die Daten in 3 verschiedenen Experimenten bestimmt wurden, die jeweils in Probenpräparation, Flussbestimmung, Messung und Auswertung unabhängig voneinander waren, ergibt sich ein durchgängiger, konsistenter Datensatz. Der Übergang zu den Daten, die von Gloris et al. [GMS<sup>+</sup>01] in Kooperation mit unserem Institut bestimmt wurden, ist ausgezeichnet. Im überlappenden Energiebereich aus den Experimenten mit Energien der Strahlprotonen von 70 MeV und 45 MeV ist ebenfalls keine systematische Abweichung zu erkennen. Dies spricht sowohl für eine korrekte Berechnung der Bremsung der Protonen, als auch für die exakte Bestimmung der Flussdichten in den verschiedenen Experimenten. Diese Befunde gelten so auch für die anderen Anregungsfunktionen.

In Abbildung 5.11 ist die Anregungsfunktion für das nächst leichtere Produkt  $^{206}\text{Bi}$  gezeigt. Hier ist der Einfluss der verschiedenen Bleisotope deutlicher zu erkennen. Das Maximum der Neutronenevaporation ist entsprechend der höheren Schwellenenergie ebenfalls zu höheren Energien verschoben. Der Abstand der Energie mit der maximalen Produktion bei 27 MeV aus dem häufigsten Isotop  $^{208}\text{Pb}$  und der berechneten Schwelle (18.7 MeV) liegt wie zuvor bei etwa 8.3 MeV. In der vergrößerten Darstellung kann man eine leichte Asymmetrie des Maximums erkennen, welche auf die Bildung aus  $^{208}\text{Pb}$  bzw.  $^{207}\text{Pb}$  zurückzuführen ist.

Die Werte von Deptuła et al. [DKK<sup>+</sup>90] liegen klar unter den übrigen Daten. Die Autoren geben allerdings keine Wirkungsquerschnitte für die natürliche Isotopenzusammensetzung des Bleis an, sondern bestrahlten angereicherte Proben aus  $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  und  $^{208}\text{Pb}$ . Unter Berücksichtigung der angegebenen Anreicherungsgrade wurde für diesen Vergleich eine Umnormierung auf natürliches Blei (ohne  $^{204}\text{Pb}$ ) vorgenommen. Die Unterschiede zu den übrigen Daten sind offensichtlich. Die Autoren benutzten die Reaktion  $^{27}\text{Al}(p,3pn)^{24}\text{Na}$  zur Flussdichtenbestimmung und verwendeten dazu die relativ alten Monitorwirkungsquerschnitte nach Tobailem [Tob81]. Besonders für diese Reaktion zeigen allerdings neuere Untersuchungen eine deutliche Abweichung von teilweise mehr als 20 % zu den Werten von Tobailem [TTG<sup>+</sup>01, TSB<sup>+</sup>01]. Ein weiterer Nachteil der Verwendung dieser Monitorreaktion ist die Anfälligkeit gegenüber sekundären Neutronen durch die niedrige Schwelle der  $^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$  Reaktion. Die mögliche Produktion von  $^{24}\text{Na}$  durch sekundäre Neutronen hätte somit eine scheinbar höhere Flussdichte und damit niedrigere Wirkungsquerschnitte zu Folge. Des Weiteren wurde die Flussdichte nur über eine einzelne Aluminiumfolie am Anfang des Stacks bestimmt, so dass eine mögliche Divergenz des Strahls und damit die Abnahme der Flussdichte in den hinteren Folien nicht berücksichtigt werden konnte. Bei der Betrachtung der ebenfalls von Deptuła et al. [DKK<sup>+</sup>90] gemessenen Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{205}\text{Bi}$  ergeben sich ähnliche Diskrepanzen, wie Abbildung 5.12 zeigt. Die Daten von Lagunas-Solar et al. [LSCN<sup>+</sup>87] liegen im Maximum der Anregungsfunktion unterhalb der Werte dieser Arbeit. Die Modellrechnungen (siehe Kapitel 6, Abbildung 6.3) liegen noch etwas über den Werten dieser Arbeit, geben aber die Form des Maximums gut wieder und scheinen damit die Daten dieser Arbeit zu bestätigen. Für einen Vergleich der Daten dieser Arbeit

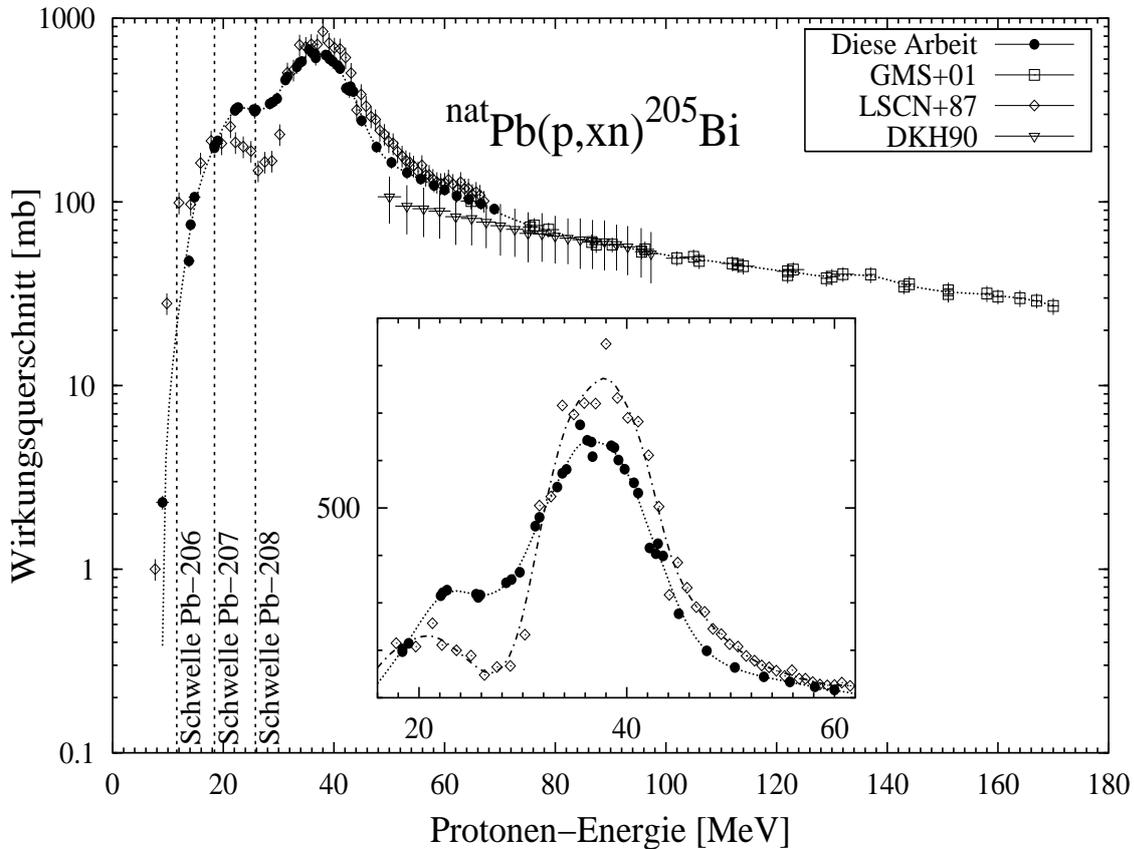
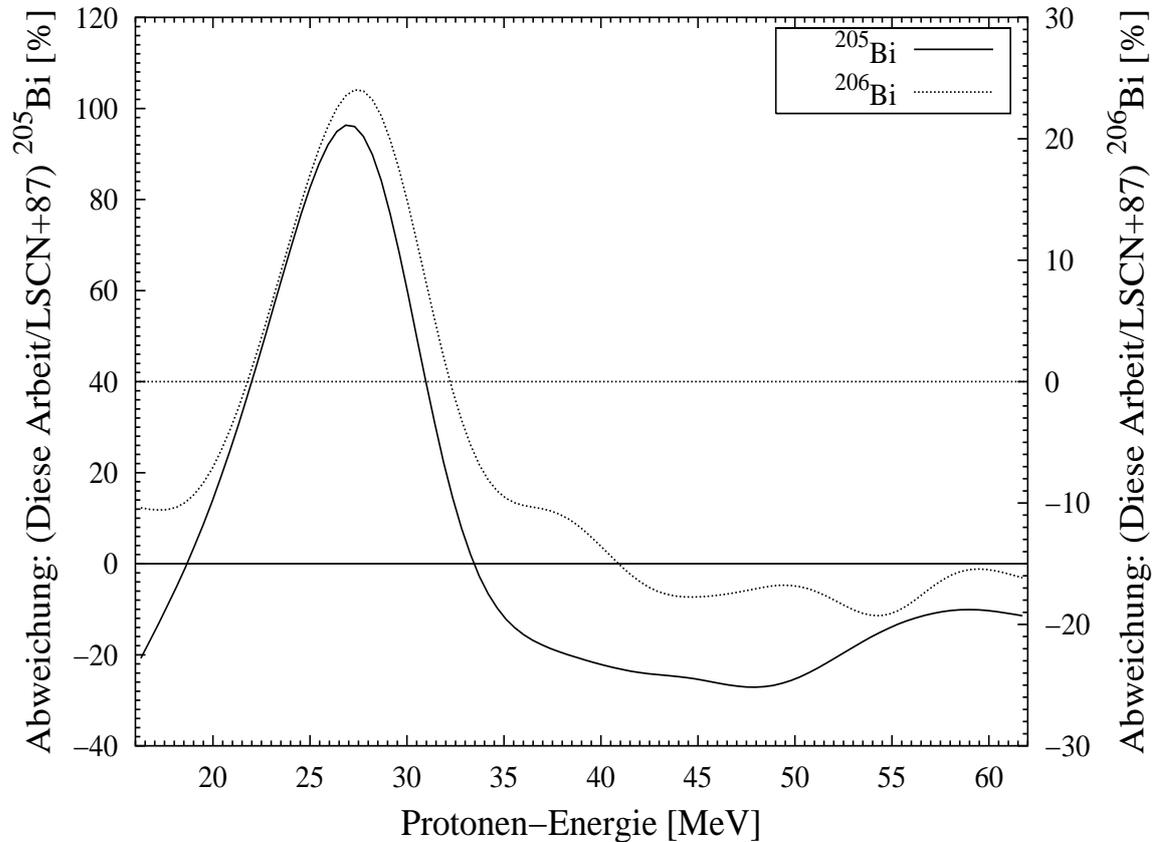


Abbildung 5.12.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{nat}\text{Pb}(p,xn){}^{205}\text{Bi}$

mit den Werten von Laganas-Solar müssen die Ergebnisse für die Produktion des  ${}^{205}\text{Bi}$  ebenfalls einbezogen werden.

Abbildung 5.12 zeigt die Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{nat}\text{Pb}(p,xn){}^{205}\text{Bi}$  aus den Daten dieser Arbeit, Messungen von Laganas-Solar et al., Deptuła et al. und Gloris et al. [GMS+01]. Wie schon in den beiden vorangegangenen Beispielen ist der Anschluss an die Daten von Gloris et al. sehr gut. Auffallend ist wiederum die Diskrepanz zu den Daten von Laganas-Solar et al. [LSCN+87] und Deptuła et al. [DKK+90]. Hier liegen die Werte nach [DKK+90] im Bereich der höheren Energien in guter Übereinstimmung mit den Wirkungsquerschnitten von Gloris et al., fallen dann aber deutlich unter die Werte dieser Arbeit. Eine mögliche Erklärung könnte eine fehlerhafte Flussbestimmung durch Deptuła et al. sein.



**Abbildung 5.13.:** Prozentuale Abweichung der Daten dieser Arbeit und der Werte nach [LSCN+87] für die Reaktionen  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{205}\text{Bi}$  und  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{206}\text{Bi}$

Abbildung 5.13 macht die Abweichungen zwischen dieser Arbeit und den Daten nach [LSCN+87] auch unter Berücksichtigung der Reaktion  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{206}\text{Bi}$  deutlich. Dabei wird das Verhältnis der beiden Anregungsfunktionen dargestellt, die jeweils, wie in den Abbildungen 5.12 und 5.11 gezeigt, als kubische Splines an die Daten angepasst wurden. In den dort gezeigten Abbildungen der Anregungsfunktionen ist zu erkennen, dass die Ausgleichskurven die experimentellen Daten gut wiedergeben. Aber wegen der Unsicherheiten der zugrundeliegenden Daten und der rein empirisch funktionalen Beschreibung sind diese nicht zwingend eine geeignete Repräsentation der Daten. Bildet man aus den zwei Funktionen für beide Reaktionen jeweils das Verhältnis, so gibt dieses einen Hinweis auf eine mögliche Systematik der gefundenen Abweichungen. Dies ist offensichtlich der Fall, wie man in Abbildung 5.13 erkennen kann. Obwohl, wie beschrieben, diese Darstellung vorsichtig interpretiert werden

muss, ist der Verlauf der Abweichung für beide Reaktionen fast identisch. Für Energien von mehr als 32-33 MeV liegen die Daten dieser Arbeit um etwa 20 % unter denen von Lagunas-Solar et al. Darunter erfolgt eine Umkehr der Verhältnisse. Zwar stimmen hier die Abweichungen im Maximum nicht überein (fast 100 % für die Produktion von  $^{205}\text{Bi}$ , 24 % bei  $^{206}\text{Bi}$ ), aber der Verlauf dieser beiden Kurven legt nahe, dass diese Unterschiede gemeinsame Ursachen haben. Unklar ist, wo die Gründe für dieses Ergebnis zu suchen sind. Eine fehlerhafte Flussbestimmung scheidet ebenso aus, wie eine ungenügende Berechnung der Protonenenergien. Der glatte Verlauf der Funktion, welche die Unterschiede darstellt, macht auch eine Problematik in der Probenpräparation oder den nachfolgenden Messungen unwahrscheinlich.

Das Maximum der Anregungsfunktion liegt bei 37-38 MeV, also 11.7 MeV über der Schwelle für die Produktion aus dem schwersten Isotop  $^{208}\text{Pb}$ . Das Wachsen dieser Differenz steht im Einklang mit der Vorstellung, dass bei geringeren Energien weniger Nukleonen abgegeben werden können und daher die Produktion der leichteren Nuklide erst bei diesen Energien dominant stattfindet.

Dieser Trend setzt sich auch bei der Bildung von  $^{204}\text{Bi}$  fort. Die im untersuchten Energiebereich erstmals bestimmte Anregungsfunktion ist in Abbildung 5.14 zusammen mit den Daten von Gloris et al. aufgezeigt. Das Maximum liegt in Fortführung der schon beschriebenen Tendenz bei höheren Energien, relativ zur Schwellenenergie für die Reaktion aus  $^{208}\text{Pb}$  bei 12.7 MeV. In dieser Reaktion tragen alle 4 Isotope  $^{204,206,207,208}\text{Pb}$  zur Produktion bei. Deutlich ist der Anteil aus der Reaktion  $^{204}\text{Pb}(p,n)^{204}\text{Bi}$  zu erkennen, da unterhalb von 20 MeV nur diese Reaktion stattfinden kann. Aber auch im weiteren Verlauf der Anregungsfunktion erkennt man Strukturen, welche aus der jeweils hinzukommenden Produktion aus den schwereren Isotopen resultieren.

Dieses Unterkapitel abschließend folgt die Diskussion der Anregungsfunktion der Reaktion  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{203}\text{Bi}$  anhand der Abbildung 5.15. Wiederum ist das Maximum der Produktion deutlich zu höheren Energien verschoben und im Vergleich zu den bisherigen Anregungsfunktionen weniger stark ausgeprägt. Auch in diesem Beispiel ist im niederenergetischen Teil der alleinige Anteil des Isotops  $^{204}\text{Pb}$  deutlich zu erkennen. Für die eindeutig nachgewiesene Produktion unterhalb der geringsten berechneten Schwellenenergie kommen möglicherweise Fehler in diesen Berechnungen oder der Bremsrechnung innerhalb der hintersten Folien im Stack in Frage. Das Maximum

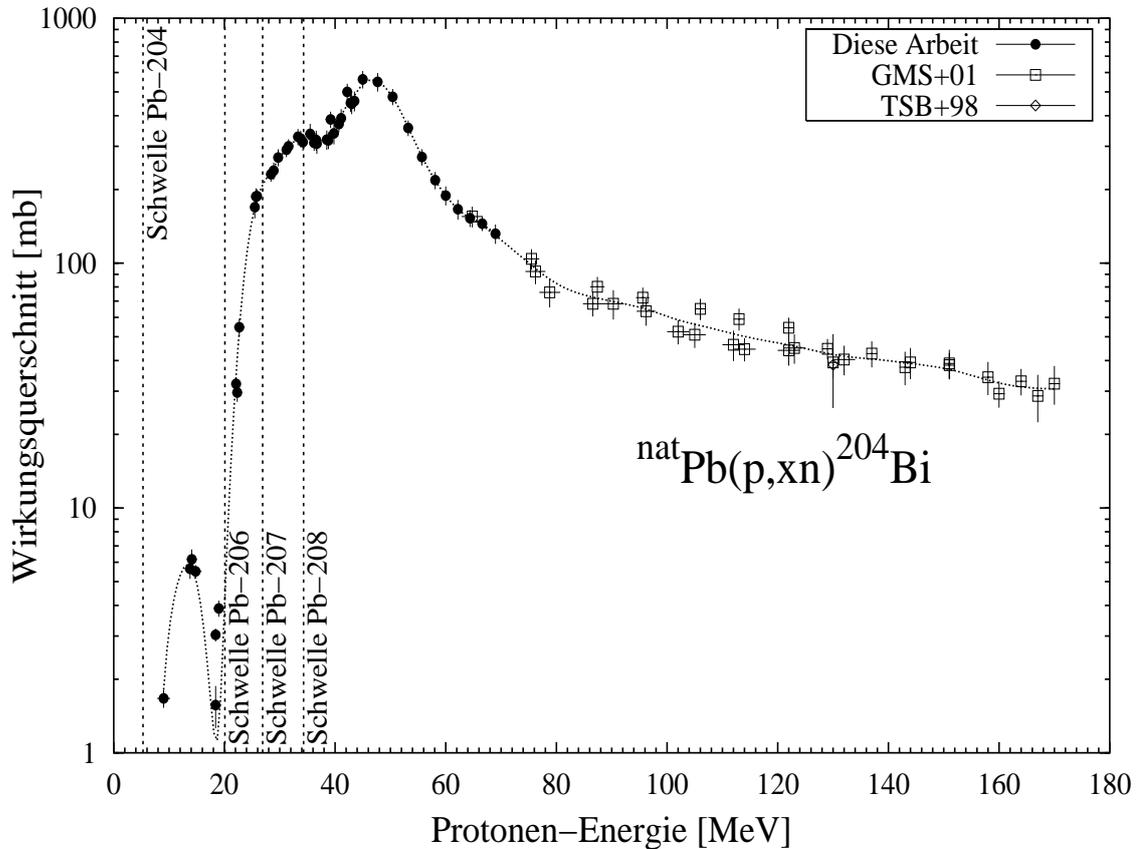


Abbildung 5.14.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,xn){}^{204}\text{Bi}$

der Produktion findet man für diese Reaktion 15.4 MeV oberhalb der Schwelle für eine Produktion aus  ${}^{208}\text{Pb}$ . Die Abhängigkeit des Maximums von der Anzahl der evaporierten Neutronen ist damit eindeutig in Übereinstimmung mit theoretischen Erwartungen.

Insgesamt konnten für fünf  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,X){}^{20x}\text{Bi}$  Reaktionen erstmals vollständige Anregungsfunktionen von den Schwellenenergien bis in den Energiebereich gemacht werden, der schon zuvor durch Arbeiten am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover erfasst worden war. In allen Fällen zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung mit den vorhandenen Daten. Auch die Ergebnisse der verschiedenen Experimente dieser Arbeit, welche mit unterschiedlichen Einschussenergien durchgeführt wurden, sind in vollständiger Konsistenz zueinander. Der Vergleich mit den Daten von Lagunas-Solar et al. [LSCN<sup>+</sup>87] und Deptuła et al. [DKK<sup>+</sup>90] zeigt Abweichungen. Diese sind noch nicht abschließend geklärt, je-

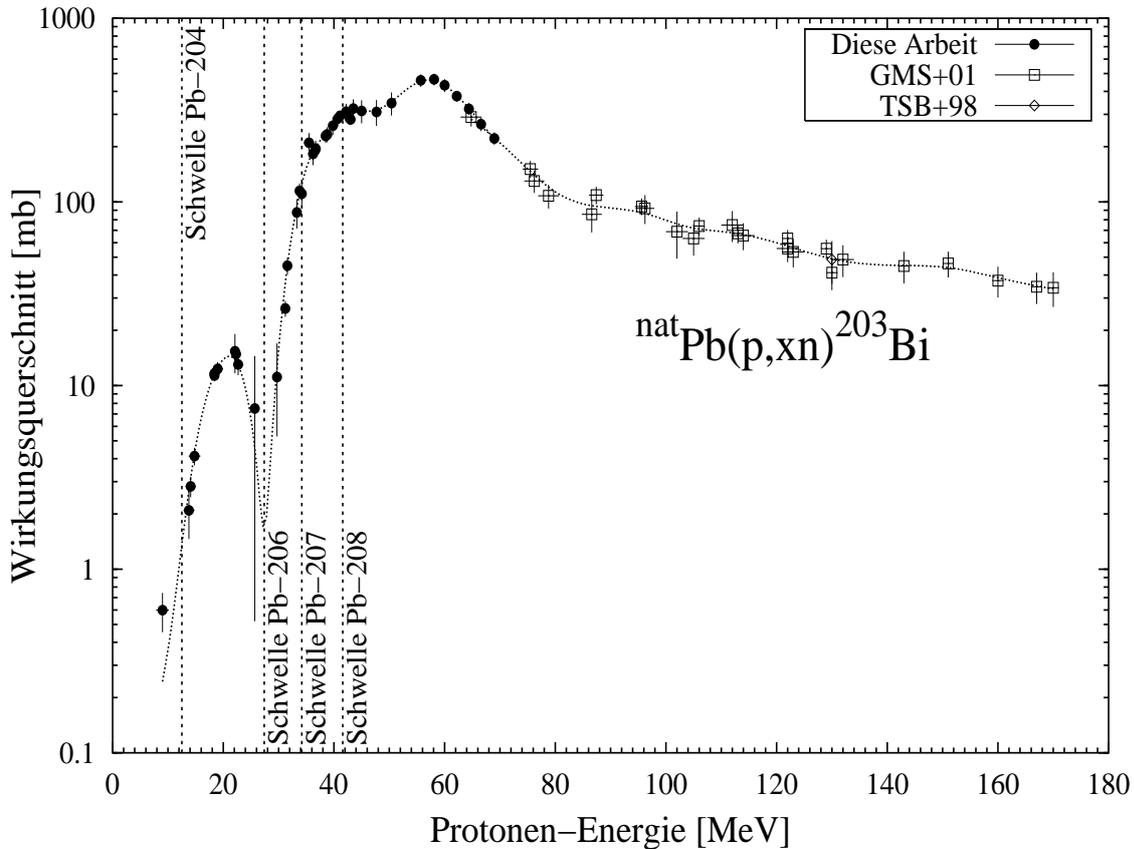
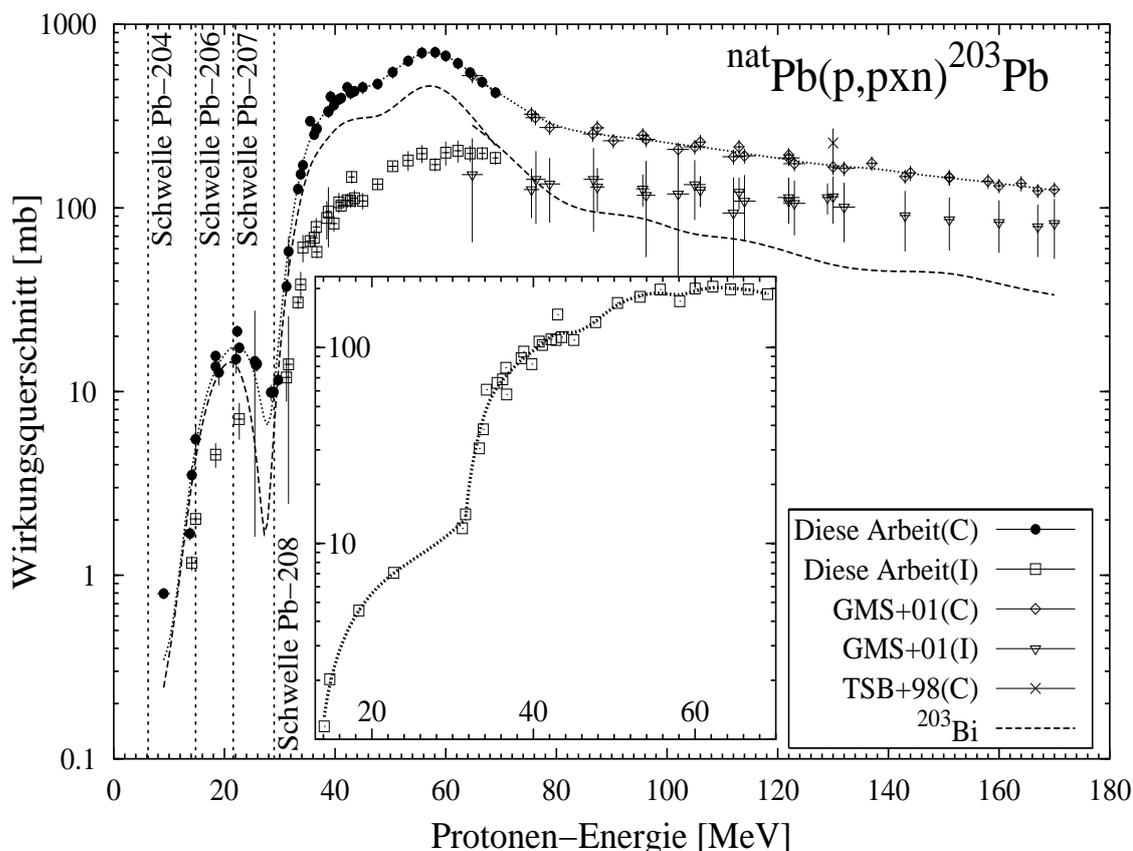


Abbildung 5.15.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,xn){}^{203}\text{Bi}$

doch scheint die Annahme berechtigt, dass gerade im Vergleich mit den Modellrechnungen die Daten dieser Arbeit keine systematischen Fehler aufweisen.

### 5.3.3. (p,pxn) Reaktionen

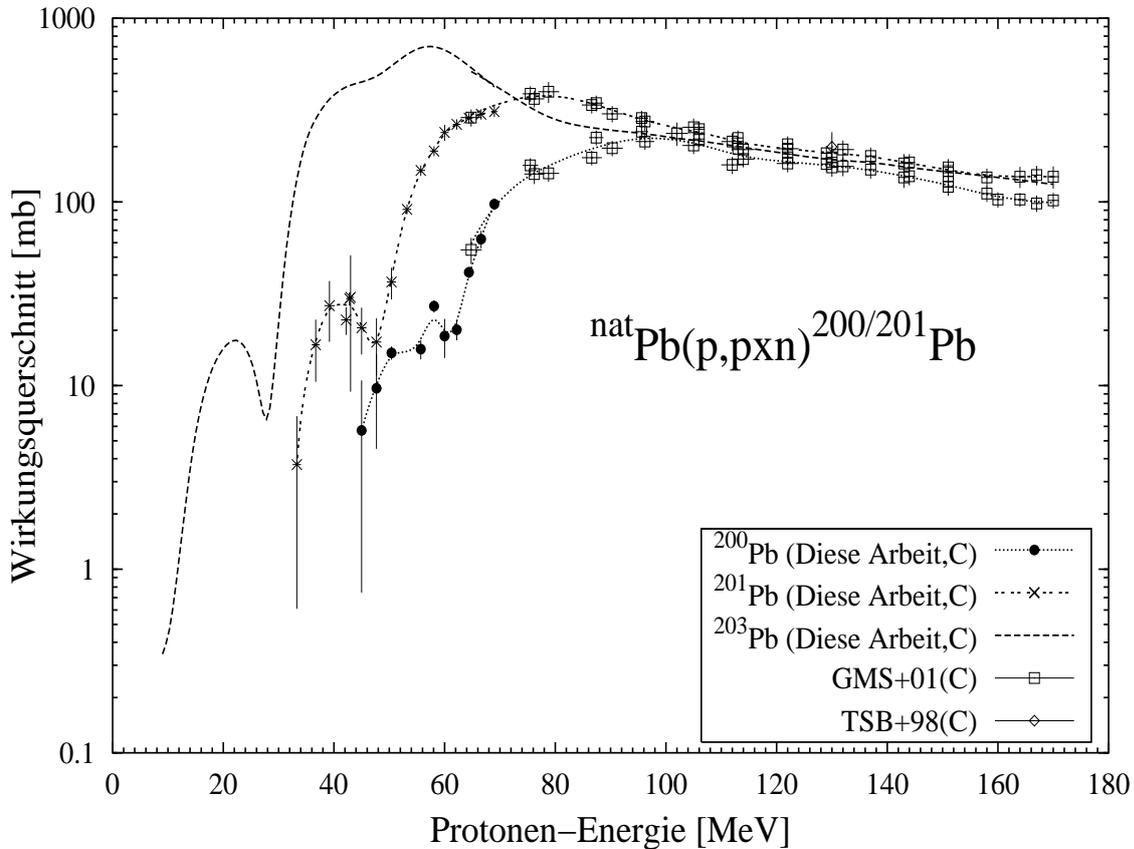
Im Gegensatz zu den Bismutisotopen, die alle direkt gebildet werden, trägt bei den Bleinukliden neben der direkten Produktion auch der Zerfall der gebildeten Mutter zu den gemessenen Aktivitäten bei. Sofern der Wirkungsquerschnitt für die Erzeugung der Mutter bekannt ist, können diese kumulativen Aktivitäten korrigiert werden. In Abbildung 5.16 ist hierfür das Beispiel der Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,pxn){}^{203}\text{Pb}$  gezeigt. Bei der Anregungsfunktion der direkten Produktion erkennt man die jeweiligen Maxima aus den vier Isotopen des Blei. Die eingetragenen Schwellenenergien wurden jeweils für (p,txn) Reaktionen berechnet. Diese Reaktionen finden auch statt, wie



**Abbildung 5.16.:** Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{nat}\text{Pb}(p,pxn){}^{203}\text{Pb}$ . Mit (I) sind direkte Wirkungsquerschnitte gekennzeichnet, mit (C) die kumulativen Ergebnisse. Zum Vergleich ist die Ausgleichskurve der Anregungsfunktion  ${}^{nat}\text{Pb}(p,xn){}^{203}\text{Bi}$  eingetragen. Zur Verdeutlichung ist die Anregungsfunktion für die direkte Produktion nochmals vergrößert dargestellt.

die Anregungsfunktion der direkten Produktion zeigt. Die Anregungsfunktion besitzt erwartungsgemäß nicht das Minimum zwischen 26 und 28 MeV, welches bei der Produktion des  ${}^{203}\text{Bi}$  zu beobachten ist.

Die Anregungsfunktionen für die Reaktionen  ${}^{nat}\text{Pb}(p,pxn){}^{201}\text{Pb}$  und  ${}^{nat}\text{Pb}(p,pxn){}^{200}\text{Pb}$  finden sich in Abbildung 5.17. Für beide Reaktionen liegen ausschließlich kumulative Daten vor, da die Mutternuklide  ${}^{200}\text{Bi}$  und  ${}^{201}\text{Bi}$  mit den experimentellen Methoden dieser Arbeit nicht erfasst werden konnten. Zum Vergleich ist die geglättete Darstellung der Reaktion  ${}^{nat}\text{Pb}(p,pxn){}^{203}\text{Pb}$  gezeigt. Wie auch bei den Bismutnukliden zeigt sich für leichtere Bleisotope eine Verschiebung des Maximums der Anre-



**Abbildung 5.17.:** Experimentelle Anregungsfunktionen der Reaktionen  $^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{200/201}\text{Pb}$  im Vergleich zur geglätteten Darstellung der Reaktion  $^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{203}\text{Pb}$

gungsfunktion zu höheren Energien bei gleichzeitiger Abnahme der maximalen Wirkungsquerschnitte.

Ob das angedeutete lokale Maximum bei etwa 58 MeV für die Produktion des  $^{200}\text{Pb}$  nur ein Ausreißer oder tatsächlich das Ergebnis des Beitrags aus der  $^{204}\text{Pb}(p,p4n)^{200}\text{Pb}$  Reaktion ist, kann an dieser Stelle nur im Rahmen der Systematik diskutiert werden. In diesem Fall aber kann man dieses Maximum erwarten, auch wenn dessen Ausprägung, wie auch bei den Bismutnukliden, mit der Entfernung vom Targetelement abnehmen sollte. Weitere Experimente mit einer feineren Energieauflösung sind in Vorbereitung, um auch in diesem Fall eine Erweiterung der Datenbasis zu ermöglichen.

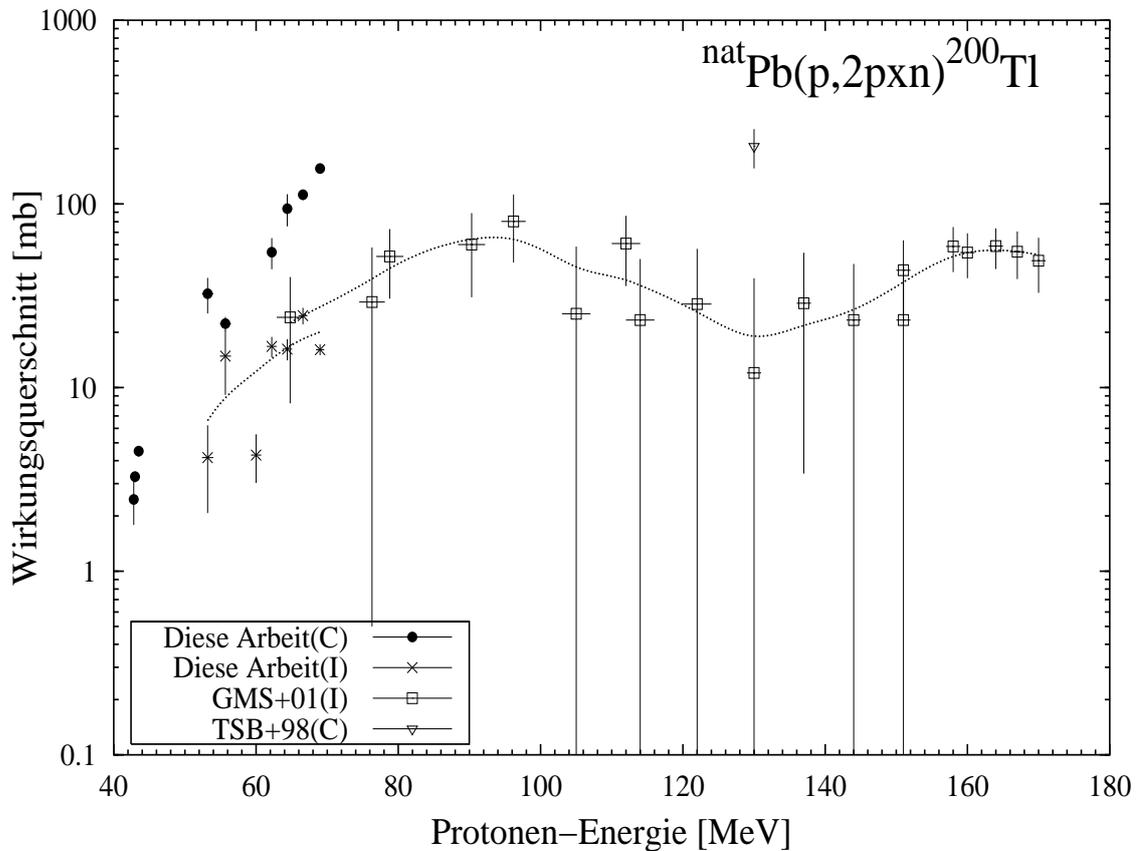
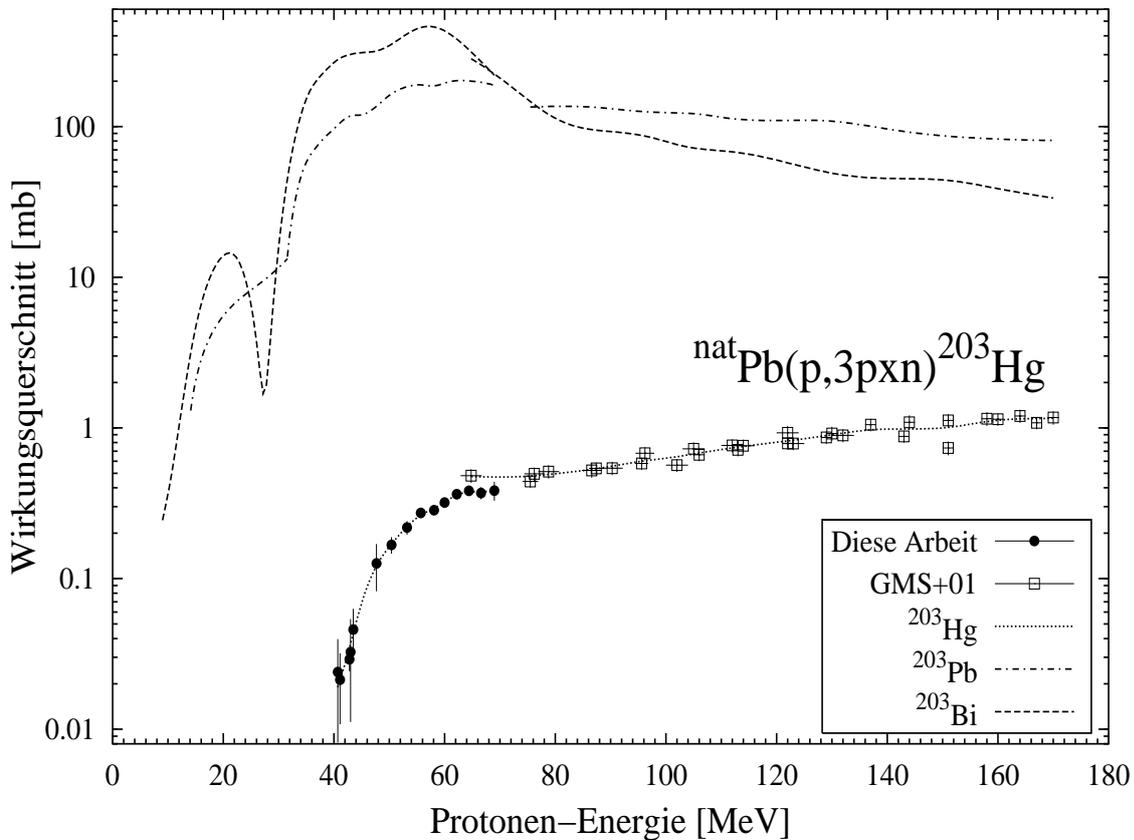


Abbildung 5.18.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,2\text{pxn}){}^{200}\text{Tl}$

### 5.3.4. (p,2pxn) Reaktionen

Für die (p,2pxn)-Reaktionen konnten die kumulativen Wirkungsquerschnitte für die Bildung der Thalliumisotope  ${}^{200,201,202}\text{Tl}$  bestimmt werden. Für  ${}^{200}\text{Tl}$  konnten auch direkte Wirkungsquerschnitte berechnet werden, welche in Abbildung 5.18 gezeigt werden. Auffallend ist der immer geringere Einfluss der verschiedenen Bleisotope. In der Anregungsfunktion lassen sich keine Strukturen mehr erkennen. Die Wirkungsquerschnitte liegen hierbei deutlich unter den Werten der Blei- und Bismutnuklide. Gloris et al. [GMS<sup>+</sup>01] geben keine kumulativen Daten an, aber der Verlauf der Werte für die direkte Produktion deutet an, dass deren Daten und die Werte von Titarenko et al. [TSB<sup>+</sup>98] verträglich sind.



**Abbildung 5.19.:** Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{nat}\text{Pb}(p,3\text{pxn}){}^{203}\text{Hg}$ . Zum Vergleich sind die unabhängigen Anregungsfunktionen der Isobaren  ${}^{203}\text{Pb}$  und  ${}^{203}\text{Bi}$  angedeutet.

### 5.3.5. (p,3pxn) Reaktionen

In dieser Arbeit wurde ausschließlich die Produktion von  ${}^{203}\text{Hg}$  nachgewiesen (siehe Abbildung 5.19).  ${}^{197}\text{Hg}$ , welches als nächstes Radionuklid detektierbar wäre, hat bereits einen Massenunterschied von 9 Nukleonen gegenüber  ${}^{206}\text{Pb}$  und wird daher im betrachteten Energiebereich nicht in nachweisbaren Mengen gebildet.

Bei  ${}^{203}\text{Hg}$  liegen die Wirkungsquerschnitte nochmals deutlich tiefer als bei den produzierten Thallium- und Bleiisotopen. Dies ist eine Folge der größeren Zahl von zu emittierenden Protonen. In Compound-Kern Reaktionen gibt der angeregte Kern vorzugsweise Neutronen ab, da Protonen zusätzlich die Coulomb-Schwelle überwinden müssen. In allen bisherigen Arbeiten zeigte sich daher eine starke Verschiebung des

Maximums der Massenausbeute von Spallationsprodukten zu den neutronenarmen Nukliden. Diese Tendenz kann auf Grund der Untersuchungen dieser Arbeit nun auch für die niedrigeren Protonenenergien bestätigt werden. Ein denkbarer Verlust von  $^{203}\text{Hg}$  durch Verdampfung aufgrund der relativ hohen Temperaturen während der Bestrahlung kommt angesichts der großen Differenz als alleinige Erklärung nicht in Frage.

### 5.3.6. Spaltungsreaktionen

Im untersuchten Energiebereich existiert für Protonen-induzierte Reaktionen an schweren Kernen kein spallationsdominierter Übergangsbereich. Zwischen Massenzahlen von etwa 200 bis 140 lassen sich mit den Methoden dieser Arbeit keine Aktivitäten von gebildeten Produkten nachweisen. Allerdings sind mehrere Spaltprodukte eindeutig nachweisbar. Dies ist von besonderem Interesse, da das Einsetzen von tiefer Spallation und Fragmentation in den derzeitigen Modellen nur schwer reproduzierbar ist.

Die Protonen-induzierte Spaltung von schweren Elementen war schon vielfach das Ziel von Untersuchungen. Eine Übersicht geben z. B. [Pro01, FP91]. Im Gegensatz zu den später dargelegten Möglichkeiten zur theoretischen Beschreibung durch Modelle für die targetnahen Produkte liefern entsprechende Ansätze für die Wirkungsquerschnitte von Protonen-induzierten Spaltungsreaktionen für den in dieser Arbeit betrachteten Energiebereich keine oder nicht befriedigende Ergebnisse. Dies liegt vor allem daran, dass kaum experimentelle Daten für eine Verbesserung der Modellparameter vorliegen [PMS99].

Im Gegensatz zu denen bislang diskutierten Anregungsfunktionen erfolgt hier eine Darstellung über einen größeren Energiebereich in doppelt-logarithmischer Skalierung, um den gesamten Verlauf der Anregungsfunktion deutlich zu machen. Mit den Ergebnissen dieser Arbeit ergibt sich für die Anregungsfunktionen der beiden Spaltprodukte  $^{103}\text{Ru}$  und  $^{95}\text{Zr}$  in den Abbildungen 5.20 und 5.21 eine komplette Beschreibung dieser Reaktionen von den Schwellen bis zu Energien von 2.6 GeV. Es ergibt sich eine sehr gute Übereinstimmung der Werte dieser Arbeit mit den Wirkungsquerschnitten nach Gloris et al. [GMS<sup>+</sup>01]. Auch die bei Energien von 190 MeV und 660 MeV bestimmten Daten anderer Autoren fügen sich in diese Anregungsfunktion

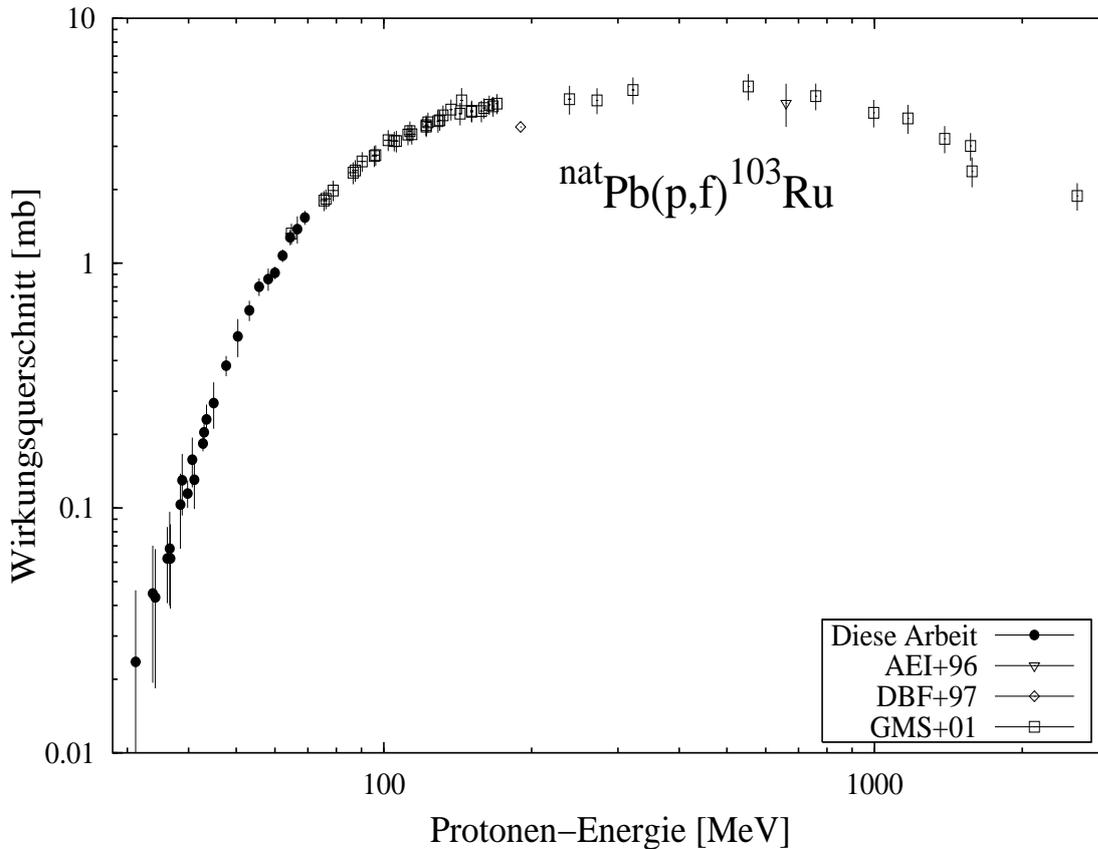
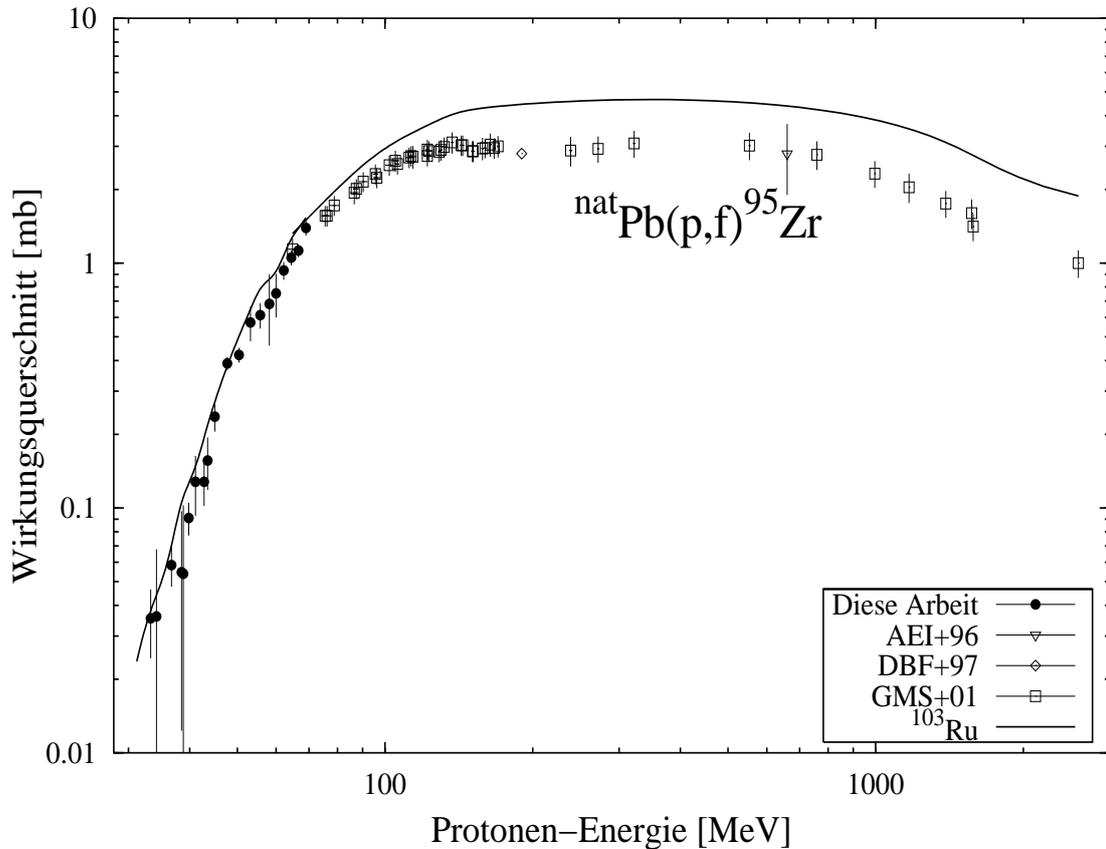


Abbildung 5.20.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,f){}^{103}\text{Ru}$

ein [AEI+96, DBF+97], wobei die Übereinstimmung bei der Produktion des  ${}^{95}\text{Zr}$  besser ist. Die Abweichung der Ergebnisse von Duijvestijn et al. [DBF+97] könnten in der experimentellen Technik zu suchen sein. Um eine eindeutige Trennung der Spaltprodukte von anderen Restkernen aus Spallationsreaktionen zu erreichen, wurden in [DBF+97] die hoch energetischen Rückstoßkerne aus der Spaltung in Catcher-Folien aufgefangen und anschließend  $\gamma$ -spektrometrisch bestimmt. Dabei wird der Anteil der aufgefangenen Kerne in den Catcher-Folien über Monte-Carlo-Simulationen ermittelt und liegt bei etwa 20%. Die diesem Verfahren inherenten Unsicherheiten könnten eine Ursache für die systematische Abweichung darstellen.

Dass die Wirkungsquerschnitte für die Produktion des  ${}^{103}\text{Ru}$  im gesamten Energiebereich über denen des  ${}^{95}\text{Zr}$  liegen, zeigt eine ausgeprägte Symmetrie der Spaltung. Es werden bevorzugt Produkte mit der halben Massenzahl gebildet. Dies, und auch die Tatsache, dass beide Nuklide neutronenreich sind, zeigt, dass der Compound-Kern



**Abbildung 5.21.:** Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,f){}^{95}\text{Zr}$ . Zum Vergleich ist eine Darstellung der experimentellen Anregungsfunktion für die Reaktion  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,f){}^{103}\text{Ru}$  gegeben.

vor der Spaltung nur wenige Nukleonen emittiert haben kann. Es handelt sich also bei der Bildung der Spaltprodukte im Energiebereich dieser Arbeit um einen relativ energiearmen Prozess („Cold Fission“) und daher nehmen die Wirkungsquerschnitte nach Durchlaufen eines Maximums zwischen 200 und 400 MeV wieder ab. Alle anderen im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Wirkungsquerschnitte für Spaltprodukte ( ${}^{99}\text{Mo}$ ,  ${}^{106}\text{Ru}$ ,  ${}^{105}\text{Rh}$ ,  ${}^{110m}\text{Ag}$ ,  ${}^{124}\text{Sb}$  und  ${}^{125}\text{Sb}$ ) beschreiben ebenfalls die Bildung neutronenreicher Nuklide.

Ein Wechsel des Reaktionsmechanismus mit zunehmender Produktion auch neutronarmer Spaltprodukte findet erst bei Energien oberhalb von etwa 100 MeV statt. Erst dann reicht die übertragene Energie aus, um die notwendige Menge an (überwiegend)

Neutronen vor der Spaltung abzugeben, damit das charakteristische  $Z/N$  Verhältnis erreicht werden kann.

## 5.4. Ergebnisse aus dem Targetelement Bismut

### 5.4.1. Anmerkungen zu den Experimenten Zuer06 und Zuer0B

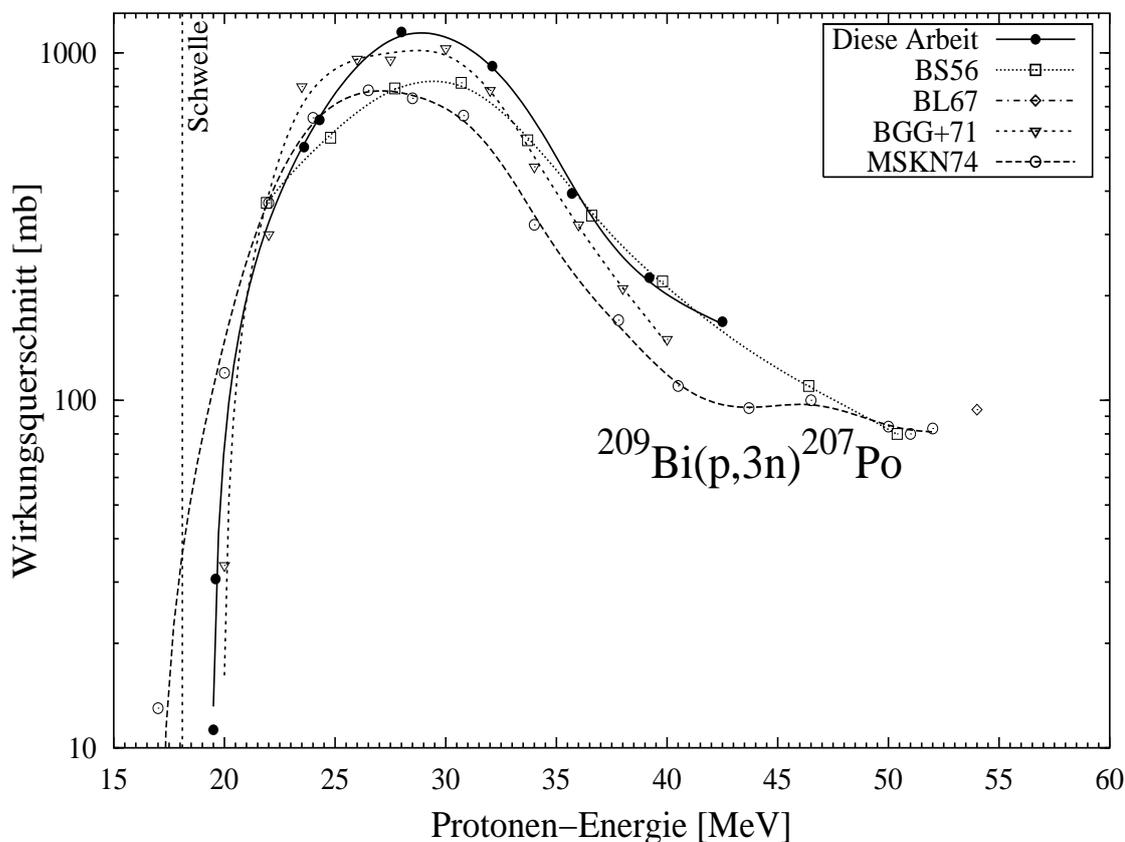
Da für diese Arbeit nur relativ dicke Bismuttargets hergestellt werden konnten, ergeben sich bei Bestrahlung dieser Proben (vergleiche Gleichung (3.14)) im Allgemeinen größere Aktivitäten als bei den Bleiprobe. Dies führt dazu, dass selbst in großen Abständen der Probe vom Detektor unmittelbar nach Bestrahlungsende unter Umständen hohe Totzeiten auftreten, die eine auswertbare Messung ausschließen. Daher konnten für die Experimente Zuer06 und Zuer0B nur nach dem Abklingen der Nuklide mit kürzeren Halbwertszeiten zuverlässig Spektren aufgenommen werden.

Bei dem Experiment Zuer0G wurde daher die Bestrahlungszeit auf zwei Stunden reduziert, so dass zwar die langlebigen Produkte nur in etwa einem Viertel der Menge gebildet wurden, aber auch eine Erfassung der Nuklide mit kürzeren Halbwertszeiten erfolgen konnte. Zur Zeit werden weitere Bestrahlungen von Bismut vorbereitet, deren Bestrahlungszeit ebenfalls deutlich verringert sein wird.

### 5.4.2. (p,xn) Reaktionen

Im Rahmen dieser Arbeit konnten die Produkte der zwei Reaktionen  $^{209}\text{Bi}(p,3n)^{207}\text{Po}$  und  $^{209}\text{Bi}(p,4n)^{206}\text{Po}$  nachgewiesen werden.

Mit einer Halbwertszeit von 5.84 Stunden konnte  $^{207}\text{Po}$  nur in den Proben des Experiments Zuer0G gemessen werden. Die Anregungsfunktionen in diesem Energiebereich wurden schon mehrfach vermessen [BS56, BL67, BGG<sup>+</sup>71, MSKN74]. Diese Ergebnisse sind im Vergleich mit den Werten dieser Arbeit in Abbildung 5.22 dargestellt. Die verschiedenen Arbeiten zeigen den erwarteten Verlauf der Anregungsfunktion für eine (p,xn)-Reaktion, allerdings ist die Lage und vor allem die Höhe des Maximums verschieden.



**Abbildung 5.22.:** Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,3n)^{207}\text{Po}$ . Die Daten sind durch eine Hilfslinie unterstützt. Zur besseren Übersicht wurde auf die Darstellung der Unsicherheiten verzichtet. Sie liegen nicht wesentlich über der Größe der Symbole.

Die Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,4n)^{206}\text{Po}$  zeigt ein ähnliches Bild (Abbildung 5.23). Wiederum unterscheiden sich die Maxima recht deutlich. Da die Daten der anderen Autoren teilweise über  $\alpha$ - oder Röntgen-Spektrometrie bestimmt wurden und auch verschiedene Monitorreaktionen eingesetzt wurden, lassen sich nur schwer abschließende Aussagen zur Wertigkeit der einzelnen Daten treffen. Anhand der eingezeichneten Ausgleichskurven lässt sich aber eine Tendenz innerhalb der Arbeiten erkennen: in beiden Reaktionen liegt das Maximum nach [BL67] bei höheren Energien und geringeren Wirkungsquerschnitten. Ebenfalls bei geringeren Wirkungsquerschnitten, aber geringeren Energien liegt das vermutliche Maximum beider Anregungsfunktionen von [MSKN74]. Ein ähnliches Bild deutet sich bei den Daten aus [BGG<sup>+</sup>71] an. Eine genauere Klärung ist mit den Angaben in den jeweiligen Arbeiten nicht möglich.

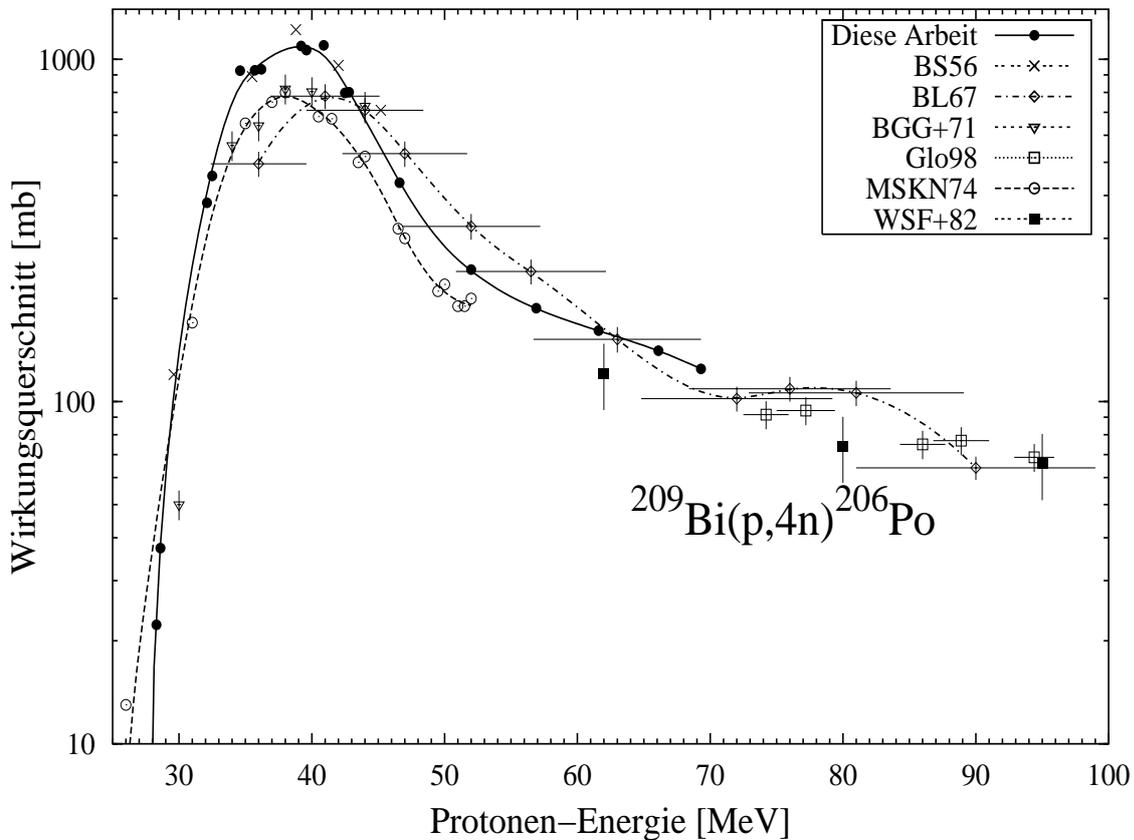


Abbildung 5.23.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,4n)^{206}\text{Po}$

Die drei Werte aus [WSF<sup>+</sup>82] fügen sich relativ gut in das Gesamtbild der anderen Arbeiten ein.

Für diese Reaktionen und auch in später diskutierten Beispielen erscheint angesichts der in mehreren Arbeiten durchgeführten chemischen Aufbereitung eine Bevorzugung der moderneren  $\gamma$ -spektrometrischen Ergebnisse angebracht. Zumeist liegen die Ergebnisse der anderen Autoren unter den Werten dieser Arbeit, so dass auf Verluste in der chemischen Abtrennung zu schließen ist.

### 5.4.3. (p,pxn) Reaktionen

Als erstes Beispiel einer (p,pxn) Reaktion dient die Anregungsfunktion in Abbildung 5.24. Für diese Reaktion liegt außer den Daten von Gloris et al. [Glo98] nur ein

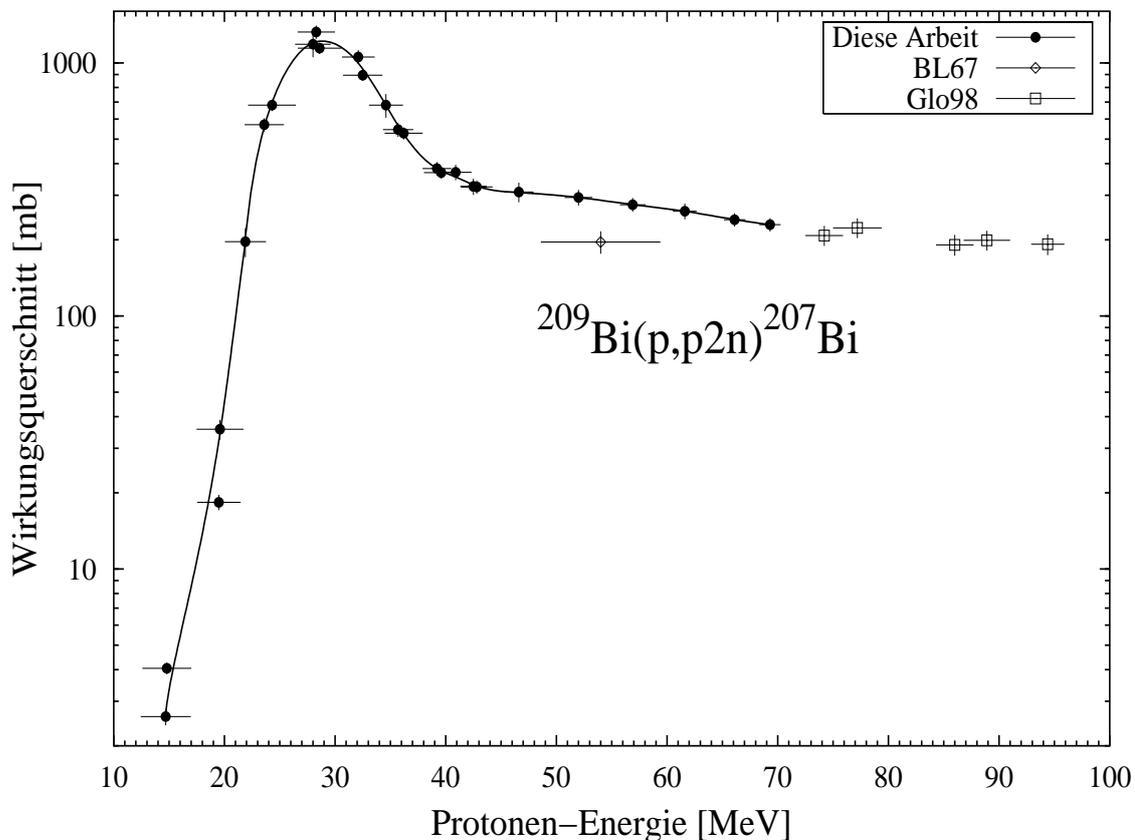


Abbildung 5.24.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,p2n)^{207}\text{Bi}$

Wert von le Beyec et al. [BL67] vor. Wie schon bei den vorangegangenen Beispielen ist der Anschluss der Anregungsfunktionen zu den Werten nach [Glo98] sehr gut. Die Diskrepanz des Wirkungsquerschnitts von le Beyec et al. ist nicht einsichtig und deckt sich nicht mit den oben besprochenen systematischen Unterschieden.

In Abbildung 5.25 wird die Anregungsfunktion der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,p4n)^{205}\text{Bi}$  vorgestellt. Wie schon bei der Diskussion der Wirkungsquerschnitte der Produktion von targetnahen Nukliden aus Blei dargelegt, verringert sich mit zunehmendem Massenunterschied das Maximum der Anregungsfunktion und verlagert sich zu höheren Energien. Wiederum besteht ein augenfälliger Abstand zu den Daten von le Beyec et al.. Da der Unterschied im Gegensatz zu den Poloniumisotopen gerade bei den produzierten Bismutnukliden so groß ausfällt, können nicht alleine Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Flussdichte verantwortlich sein. Eher legt die Abhängigkeit vom produzierten Element nahe, dass die chemische Trennung der Produkte unzu-

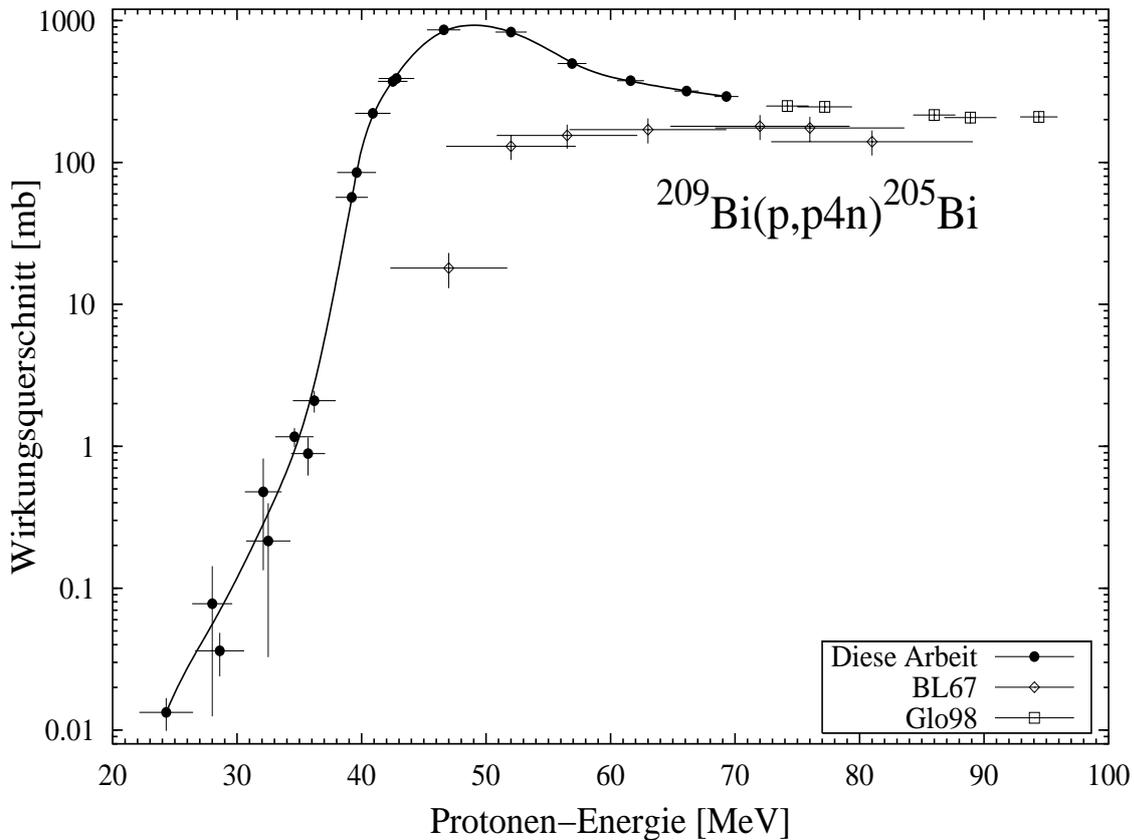


Abbildung 5.25.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,p4n)^{205}\text{Bi}$

reichend war. Dies wird durch die Beobachtung unterstützt, dass alle Werte, bei denen eine chemische Aufarbeitung stattgefunden hat, zu tief liegen. Daher scheint ein quantitativer Verlust bei der angewendeten chemischen Aufarbeitung wahrscheinlich. Eine fehlerhafte Bestimmung der Aktivität durch die  $\gamma$ -spektrometrische Messung erscheint angesichts der Vielzahl von eindeutig auswertbaren  $\gamma$ -Linien des  $^{205}\text{Bi}$  unwahrscheinlich.

#### 5.4.4. (p,2pxn) Reaktionen

Bei der Abgabe von zwei oder mehr Protonen stehen bei einer entsprechenden Anzahl von Neutronen auch Reaktionen der Art (p, $\alpha$ X) in Konkurrenz zur Emission einzelner Nukleonen. In Abbildung 5.26 ist eine eindeutige Zuordnung der Reaktionskanäle möglich. In das Diagramm sind die Schwellenenergien für die Bildung von

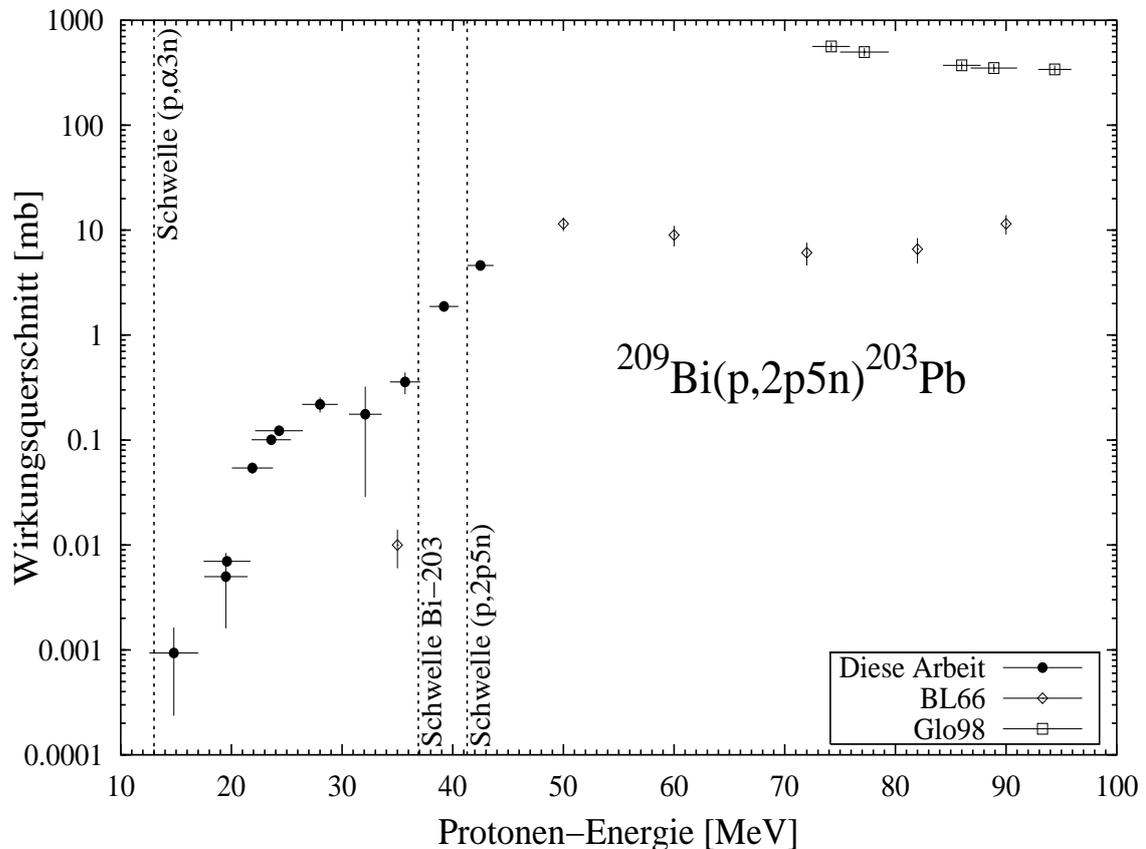


Abbildung 5.26.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,2p5n)^{203}\text{Pb}$

$^{203}\text{Pb}$  aus Bismut eingetragen, und zwar (mit abnehmender Energie) aus der Abgabe einzelner Nukleonen, aus dem möglichen Zerfall des Mutternuklids  $^{203}\text{Bi}$  und schließlich die Schwelle des  $(p,\alpha 3n)$ -Prozess. Unterhalb von etwa 36 MeV ist die Emission von komplexen Teilchen nötig, um die Reaktion stattfinden zu lassen. Der Wechsel im Reaktionsmechanismus spiegelt sich eindeutig im Verlauf der Anregungsfunktion wieder. Eine weitere Bestrahlung ist in Vorbereitung, um die Lücke in den Daten zwischen dieser Arbeit und den Werten von Gloris et al. zwischen 45 und 70 MeV zu schließen.

#### 5.4.5. $(p,3pxn)$ Reaktionen

Als einziges Produkt einer  $(p,3pxn)$  Reaktion wurde in dieser Arbeit  $^{202}\text{Tl}$  nachgewiesen. Die Wirkungsquerschnitte für dessen Produktion in Abbildung 5.27 sind im

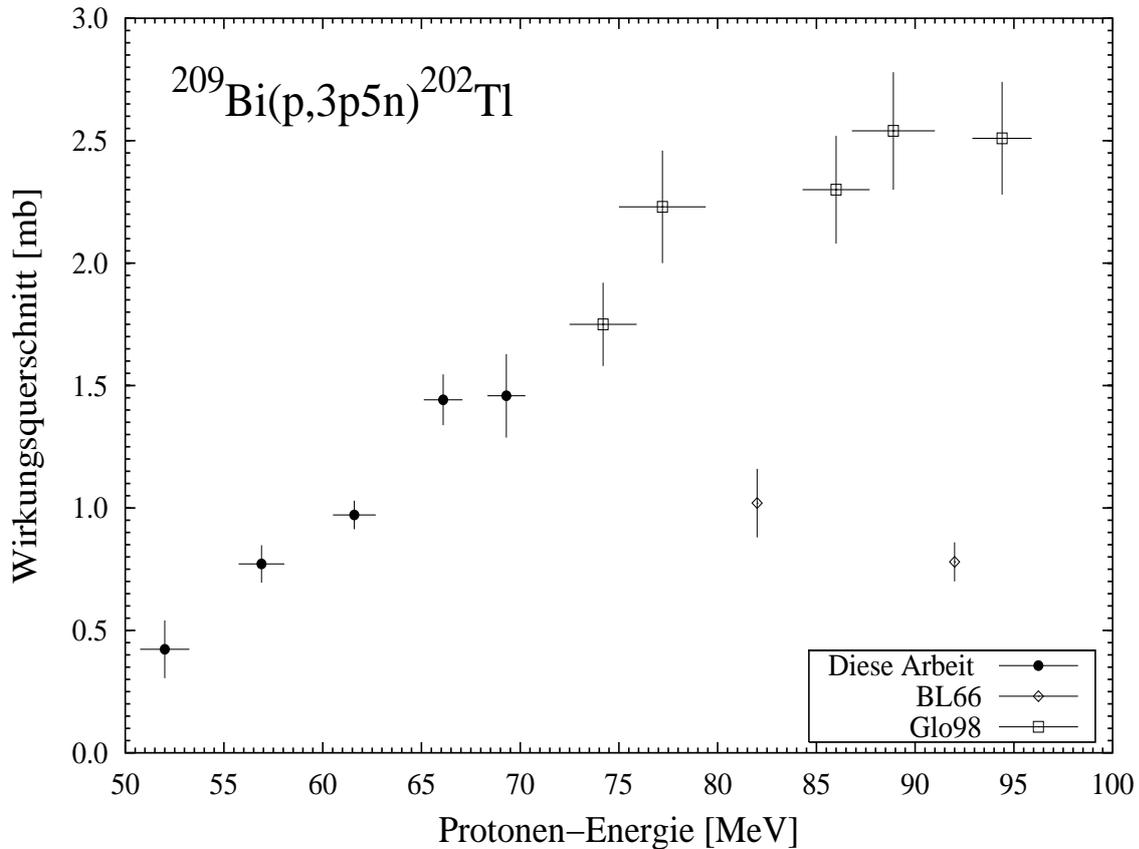
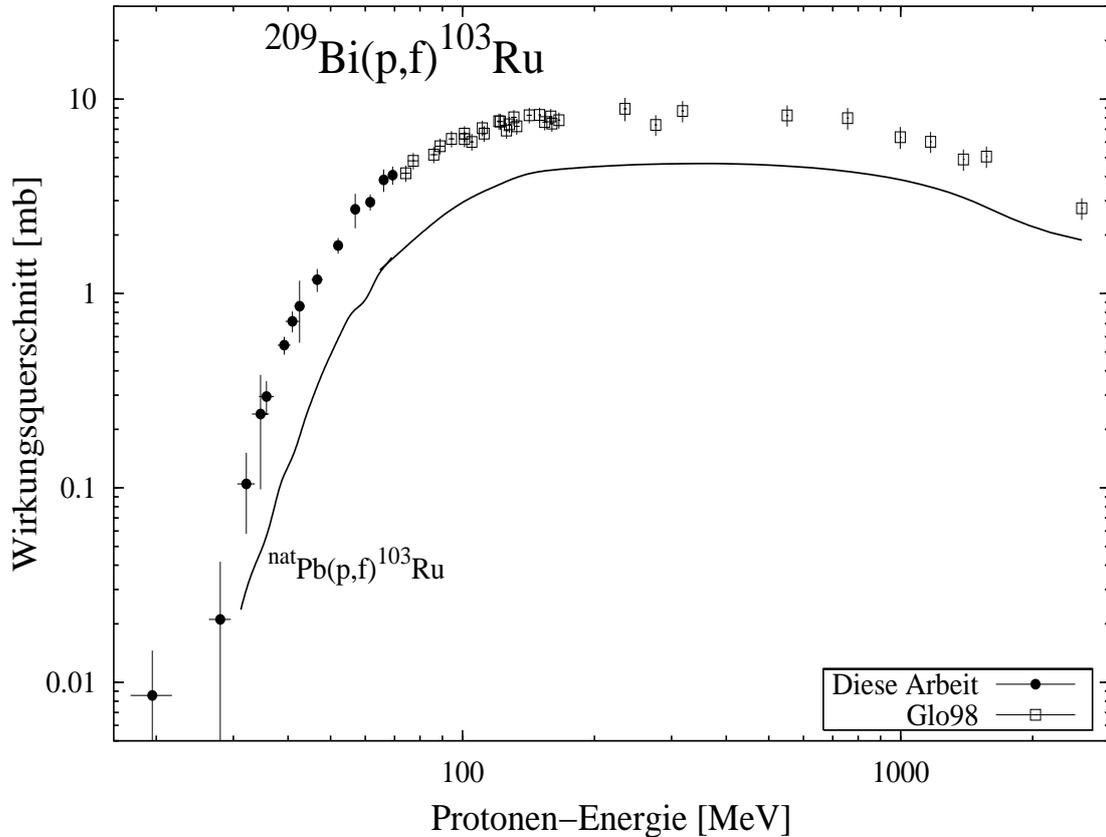


Abbildung 5.27.: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,3p5n)^{202}\text{Tl}$

Gegensatz zu den bisherigen Abbildungen in linearem Maßstab aufgetragen. Die Daten von Bimbot et al. [BL66] liegen klar unter den Werten nach [Glo98], welche in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen dieser Arbeit sind. Im Gegensatz zur Produktion des  $^{203}\text{Pb}$  können aus den ermittelten Ergebnissen keine Rückschlüsse auf die Reaktionsmechanismen gezogen werden. Offensichtlich ist die Produktion über z. B. eine  $(p,\alpha t n)$ -Reaktion nicht so effektiv, wie die Abgabe eines  $\alpha$ -Teilchen zusammen mit wenigen Neutronen. Es tritt daher keine messbare Aktivität unterhalb der Schwelle der Einzel-Nukleonen-Reaktion (47 MeV) auf.

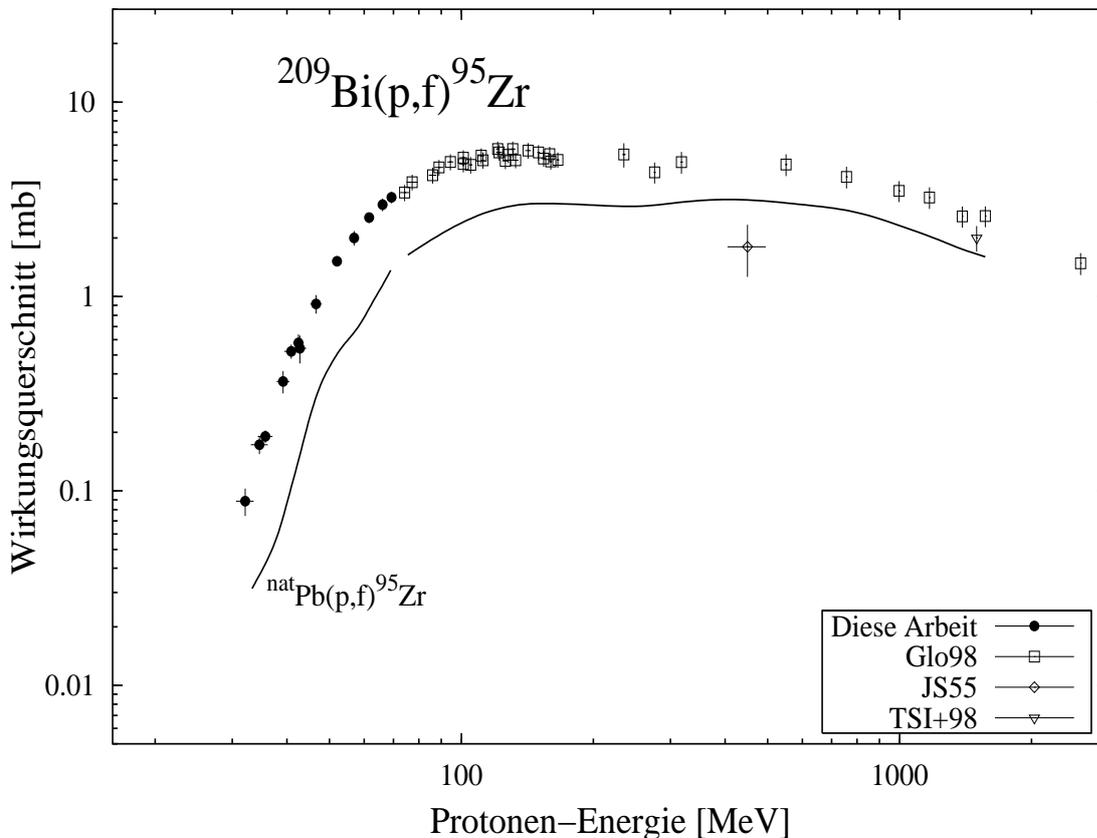
#### 5.4.6. Spaltungsreaktionen

Der im Vergleich zum Blei höhere Spaltparameter  $Z^2/A$  für Bismut von 33 gegenüber 32.5 für Blei zeigt sich klar in den Ergebnissen dieser Arbeit. Die Wirkungsquerschnitt-



**Abbildung 5.28.:** Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,f)^{103}\text{Ru}$ . Zum Vergleich ist die Darstellung der Reaktion  $^{\text{nat}}\text{Pb}(p,f)^{103}\text{Ru}$  eingezeichnet.

te für die Spaltung liegen für gleiche Nuklide durchweg um etwa einen Faktor zwei höher. Dies wird in Abbildung 5.28 verdeutlicht. Sie zeigt die Anregungsfunktionen für die Produktion von  $^{103}\text{Ru}$  aus Blei und Bismut. Dabei werden die Daten für die Produktion aus Blei durch eine Linie auf Basis der Wirkungsquerschnitte dieser Arbeit und den Werten nach Gloris et al. [GMS<sup>+</sup>01] angedeutet (vergleiche Abbildung 5.20). Offensichtlich läuft die Spaltung von Bismut analog zu der schon besprochenen niederenergetischen Spaltung in Blei ab, wie der annähernd parallele Verlauf der Anregungsfunktionen zeigt. Dies gilt auch für die Ergebnisse in Abbildung 5.29, in der eine entsprechende Darstellung für die Produktion des  $^{95}\text{Zr}$  erfolgt. Für diese Reaktion liegen auch Ergebnisse anderer Autoren vor: Titarenko et al. [TSI<sup>+</sup>98] geben bei 1.5 GeV einen Wirkungsquerschnitt von  $2.0 \pm 0.3$  mb an, was im Rahmen der



**Abbildung 5.29.:** Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,f)^{95}\text{Zr}$ . Zum Vergleich ist die Darstellung der Reaktion  $^{\text{nat}}\text{Pb}(p,f)^{95}\text{Zr}$  eingezeichnet.

Unsicherheiten mit den übrigen Werten übereinstimmt. Der Wirkungsquerschnitt aus [JS55] erscheint angesichts der Menge an konsistenten Daten und auch im Hinblick auf die Ergebnisse für das Targetelement Blei unrealistisch. Möglicherweise ist eine ungenügende chemische Abtrennung dafür verantwortlich.

## 5.5. Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse und Ausblick

Die in dieser Arbeit verwendete Methode ermöglichte eine annähernd kompletten Erfassung der Energien zwischen den Schwellen der jeweiligen Reaktionen und der primären Einschussenergien der jeweiligen Experimente von 71 MeV bzw. 45 MeV. In

mehreren Beispielen zeigten sich die Vorteile der zerstörungsfreien  $\gamma$ -Spektrometrie gegenüber Verfahren mit chemischer Abtrennung der Produktnuklide für die Zielsetzungen dieser Arbeit. Obgleich die Messungen über einen Zeitraum von drei Jahren durchgeführt wurden, und die jeweiligen Stacks in Aufbau und Konzeption unterschiedlich zusammengesetzt waren, zeigten sich keinerlei systematische Auffälligkeiten zwischen den Experimenten. Die Qualitätssicherung der Ergebnisse durch die Messung unter verschiedenen Bedingungen und weitestgehende Unabhängigkeit der dabei erzielten Daten stellte sicher, dass mögliche Unstimmigkeiten zuverlässig erkannt werden konnten. So ist in dieser Arbeit die bisher unzureichende Genauigkeit der Literaturangabe der Halbwertszeit von  $^{205}\text{Bi}$  erkannt worden und es sind bestehende Unsicherheiten bezüglich der Monitorwirkungsquerschnitte herausgearbeitet worden, obwohl beide Informationen zunächst als gesicherte Ausgangsdaten vorausgesetzt wurden.

Der breiten Erfassung der Produktnuklide durch die offline  $\gamma$ -Spektrometrie über einen großen Energiebereich stehen prinzipielle Beschränkungen bei der Erfassung der kurzlebigeren Produkte gegenüber. Diese sind durch ergänzende Bestrahlungen mit direkt anschließenden Messungen vor Ort zwar zu überwinden, aber solche Daten können bei vertretbarem Aufwand nur für wenige Energien ermittelt werden. Damit entfällt zudem die Möglichkeit, über einen physikalisch sinnvollen Verlauf der Anregungsfunktionen, der in dieser Arbeit in jedem Fall gewährleistet war, auf die Qualität der Daten zu schließen. Systematische Fehler bei der Auswertung sind dann schwer festzustellen. In Ergänzung dieser Arbeit erscheint es aber denkbar, mit den gewonnenen Erfahrungen und der erfolgreichen Validierung der neuentwickelten Auswertungsmethode solche Untersuchungen ergänzend vorzunehmen.

Einen völlig neuen Ansatz stellen die Experimente der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt dar. In „inverser Kinematik“ werden dort schwere Kerne auf bis zu einige GeV pro Nukleon beschleunigt und auf ein Wasserstofftarget geleitet [WEA<sup>+</sup>00]. Die entstehenden Fragmente werden in einem zweistufigen Magnetseparator identifiziert. Ein Vorteil ist, dass alle Produkte unabhängig von ihrer Halbwertszeit oder den Strahlungseigenschaften online detektiert werden können. So wurden von Wlazło et al. [WEA<sup>+</sup>00] kürzlich mehr als 850 direkte Wirkungsquerschnitte der Reaktion  $^{208}\text{Pb}(p,X)$  bestimmt.

Ein Nachteil dieser Technik ist der immense technische Aufwand und die Probleme bei der Detektion. Die Nachweiswahrscheinlichkeiten der Detektoren sind experimentell schwer zu verifizieren und werden größtenteils in Monte-Carlo-Simulationen ermittelt. Die nötigen Korrekturen hängen von der Ladung, der Massenzahl und Kernladungszahl der Produkte ab. Weiterhin besitzt das System nur eine begrenzte räumliche Erfassung sowie Verluste im Separationsweg. Insgesamt betrachtet, stellt diese Technik eine gute Ergänzung der quantitativ sehr zuverlässigen Auswertung mittels  $\gamma$ -Spektrometrie dar. Vor allem zur Validierung und Entwicklung der Modellrechnungen sind die gewonnen detaillierten Daten sehr wertvoll, da teilweise sogar eine Messung der Raum- und Energieverteilung der Produkte möglich ist [MS00]. Ein Vergleich der Ergebnisse von Gloris et al. [GMS<sup>+</sup>01] mit den Daten von Wlazło et al. [WEA<sup>+</sup>00] findet sich in [TSB<sup>+</sup>01].

Die Möglichkeiten der  $\gamma$ -Spektrometrie im Allgemeinen werden durch zwei Faktoren limitiert: den großen zeitlichen Aufwand bei der Analyse und Bewertung der enormen Datenmengen sowie der Auflösung und Nachweiswahrscheinlichkeit der verwendeten Detektoren. Moderne Halbleiterdetektoren bewegen sich bezüglich dieser Parameter mittlerweile an den Grenzen der technischen Machbarkeit. Sofern man an dieser etablierten und universell einsetzbaren Technik festhalten will, sind Fortschritte vor allem bei der Auswertung denkbar. Eine streng physikalische Beschreibung und Anpassung der gemessenen Spektren könnte die Genauigkeit der Peakbestimmung erhöhen [BKF99]. Ein ebenfalls viel versprechender Ansatz ist die Identifikation des Hintergrunds im gesamten Spektrum und der anschließenden Analyse der dann isolierten Peaks [Col99]. In der Auswertung der gefundenen Peaks könnten neue Ansätze einer vollständig iterativen Analyse auch eine anteilige Trennung verschiedener Nuklide in bislang unauflösbaren Multiplets möglich machen. Erste Ansätze dieser Technik konnten erfolgreich im Rahmen dieser Arbeit eingesetzt werden. Der große Aufwand einer vollständigen Implementation konnte aber in der begrenzten Zeit nicht erfolgen. Für zukünftige Untersuchungen ist eine Weiterentwicklung der in dieser Arbeit vorgestellten Ansätze zweifellos anzustreben.



## 6. Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit theoretischen Modellrechnungen

Angesichts des enormen Aufwands bei der experimentellen Bestimmung von Wirkungsquerschnitten ist der Bedarf an Methoden zur theoretischen Modellierung von Kernreaktionen groß. Zur Beurteilung der Qualität und zur Verbesserung der Modelle bleiben experimentelle Messungen bis auf weiteres unverzichtbar.

Nur für Protonen mit Energien unterhalb von etwa 15 MeV findet die Wechselwirkung mit den in dieser Arbeit betrachteten schweren Kernen als Ganzes statt, für höhere Energien müssen die Bestandteile des Kerns als System von mehreren Teilchen betrachtet werden, die über komplexe Wechselwirkungen interagieren. Für Energien der Projektile jenseits von mehreren GeV wird über Anregungen von einzelnen Nukleonen schließlich deren innerer Aufbau aus den Quarks relevant. Es ist daher nicht zu erwarten, mit einer einheitlichen theoretischen Beschreibung alle dargelegten Phänomene abbilden zu können. Da eine analytische Lösung solcher Vielkörperprobleme nicht möglich ist, versucht man über Computersimulationen Wirkungsquerschnitte für Kernreaktionen zu berechnen.

Dabei beschränken sich die überwiegend genutzten Modelle auf eine semiklassische Beschreibung der Prozesse. Der im Gegensatz dazu in jüngerer Zeit erfolgte Ansatz einer vollständig quantenmechanischen Beschreibung stellt einen neuen Weg dar [Aic91, CIF<sup>+</sup>96]. Diese fortschreitend exaktere Beschreibung wird durch die enorm steigende Rechenleistung der verwendeten Computer ermöglicht.

In [SZZD99, TSB<sup>+</sup>98] finden sich erste Beispiele für Vergleiche solcher Modellrechnungen mit experimentellen Wirkungsquerschnitten an schweren Kernen.

Der in dieser Arbeit untersuchten Energiebereich liegt im Grenzbereich zwischen reinen Niederenergie-Prozessen bis etwa 20 MeV, welche in statistischen Beschreibungen als Compoundkern-Reaktionen recht zuverlässig modelliert werden können. Bei höheren Energien liefern Intra-Nuclear-Cascade (INC) Modelle ebenfalls befriedigende Ergebnisse. Im Übergangsbereich zwischen 30 und 200 MeV stellt die Beschreibung der Pre-Equilibrium Phase die größte Herausforderung dar.

In früheren Arbeiten [FSLQ97, MN97, Glo98, CRDO98, FSQ99] zeigte sich, dass für die Beschreibung von Kernreaktionen für Energien unter 200 MeV das Programm ALICE-IPPE [SLKD95, DKLS98, SLKD98] zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten am besten geeignet ist.

## 6.1. Beschreibung von ALICE-IPPE

Das Programm ALICE-IPPE geht auf eine Entwicklung von Blann [Bla71] zurück. Dieser beschreibt den Ablauf der Kernreaktion in einem Hybridmodell der Pre-Equilibriumreaktionen (PE-Reaktionen). Die Grundlage bildet die Vorstellung eines zweistufigen Ablaufs der Kernreaktion (siehe Kapitel 3) mit Berücksichtigung einer PE-Stufe und anschließender Behandlung des Compound-Kerns. Blann kombinierte das Exciton-Modell nach Griffin [Gri66] mit dem statistischen PE-Ansatz nach Harp et al. [HMB68]. Da die Vorgänger von ALICE-IPPE schon mehrfach Gegenstand der Diskussion in Arbeiten unserer Abteilung waren [Sch95, SSH<sup>+</sup>95, Sud98], sollen hier hauptsächlich die Fortschritte gegenüber den dort beschriebenen Versionen von ALICE und dem Vorgängerprogramm AREL beschrieben werden.

Die Berechnung der Nukleonenspektren im Preequilibrium basiert auf dem geometrie-abhängigen Hybridmodell [Bla72, BV83]. Aus diesen Spektren ergibt sich die Anzahl von Neutronen oder Protonen, die in der PE-Phase emittiert werden. Eine entscheidende Verbesserung gelang durch die Berücksichtigung von PE-Cluster-Emissionen. Nach dem „Pick-Up“-Vereinigungsmodell [SIH83, IH82] werden die Emissionsspektren und -wahrscheinlichkeiten für Deuteronen und  $\alpha$ -Teilchen berechnet. In der neuesten Version wird darüber hinaus auf Grundlage von [Gad88] die direkte Produktion

von Deuteronen berücksichtigt. Die Emission von  $\alpha$ -Teilchen setzt sich aus drei Anteilen zusammen: „Pick-Up“-Reaktion [IH82], „Knock-Out“-Reaktion [FGG<sup>+</sup>79] und Cluster-Evaporation in der PE-Phase [SLKD95].

Nach dem Erreichen des Gleichgewichtszustands wird die Abregung des Kerns durch die Abgabe von Nukleonen, Komplextelchen oder  $\gamma$ -Quanten im statistischen Weisskopf-Ewing-Modell beschrieben [WE40].

## 6.2. Die Parameter des ALICE-IPPE-Modells

In allen bisherigen Untersuchungen hat sich die Wahl der Berechnungsart der Massen als einflussreichster Parameter herausgestellt. Dabei stehen folgende Möglichkeiten zur Auswahl:

- ◇ „**MS**“: Berechnung der Massen nach den theoretischen Werten von Myrs und Swiatecki [MS67]
- ◇ „**XMS**“: Berechnung der Massen nach den experimentellen Werten von Wapstra und Audi [WA85] soweit vorhanden, ansonsten wie MS
- ◇ „**XMSC**“/„**MSC**“: Wie XMS/MS, zusätzlich Berücksichtigung von Schalenkorrekturen und Paarungseffekten

Konsistent mit früheren Arbeiten unserer Gruppe finden sich die Bezeichnungen zur Berechnungsart auch so in den folgenden Diagrammen. Ebenfalls deutlichen Einfluss hat die Implementation der Niveaudichte. In der vorliegenden Version von ALICE-IPPE stehen zwei Beschreibungen der Zustandsdichten zur Auswahl:

- ◇ „**0-**“: Fermigas-Modell
- ◇ „**2-**“: Zustandsdichten nach Ignatyuk [IST75]

Die Kennzeichnung der beiden Modelle erfolgt wiederum in Anlehnung an frühere Arbeiten.

### 6.3. Durchführung der Berechnungen

Als Ergebnis der Berechnungen liefert ALICE-IPPE zunächst für ein monoisotopisches Target die direkten Produktionswirkungsquerschnitte für einen Restkern mit bestimmter Protonen- und Neutronenzahl und beschreibt damit die Restkernverteilung unmittelbar nach der Reaktion. Für die Vergleichbarkeit der experimentell bestimmten kumulativen Wirkungsquerschnitte muss deshalb in weiteren Schritten sowohl die Isotopenzusammensetzung der Targetelemente berücksichtigt werden, als auch der Zerfall von experimentell nicht zugänglichen kurzlebigen Produkten in deren bestimmbare Tochternuklide simuliert werden.

Für Blei werden vier Berechnungen durchgeführt, in denen jeweils die stabilen Isotope  $^{204,206,207,208}\text{Pb}$  als Targetkerne vorgegeben sind und anschließend deren Beträge jeweils mit den Isotopenhäufigkeiten gewichtet aufsummiert werden.

Für die Berechnung eines kumulativen Wirkungsquerschnitts müssen alle beitragenden Progenitoren identifiziert werden und anhand deren Zerfallsketten der Anteil am kumulativen Ergebnis bestimmt werden. Für jedes experimentell nachgewiesene Nuklid werden diese Informationen rekursiv auf Grundlage der NuDat-Datenbank [DK98] zusammengestellt. Die Verzweigungsverhältnisse  $p_j$  in der  $m$ -gliedrigen Zerfallskette eines Progenitors  $i$  ergeben einen Gesamtfaktor  $g_i$  des Produktionsanteils:

$$g_i = \prod_{j=1}^m p_j \quad (6.1)$$

Als Abbruchkriterium der Rekursion gilt  $g_i \leq 10^{-5}$ . Damit folgt für den kumulativen Wirkungsquerschnitt  $\sigma_{cum}$  aus dem Anteil der direkten Produktion des betrachteten Nuklids  $\sigma_{ind}$  und dessen  $n$  Progenitoren  $\sigma_{ind}^{(i)}$  die Summe:

$$\sigma_{cum} = \sigma_{ind} + \sum_{i=1}^n g_i \sigma_{ind}^{(i)} \quad (6.2)$$

Für  $m$  metastabile Zustände eines Nuklids innerhalb der Zerfallskette wird angenommen, dass diese jeweils mit der Wahrscheinlichkeit  $1/m$  besetzt worden sind, da ALICE-IPPE keine Berücksichtigung von metastabilen Produkten beinhaltet. Für die praktische Anwendung ist diese Näherung ausreichend, da die Halbwertszeiten der gemessenen Nuklide meist lang gegenüber denen der Progenitoren sind und diese daher zerfallen sind.

## 6.4. Analyse der Massenberechnungsart

Die folgenden Darstellungen zeigen den extremen Einfluss der Massenberechnung auf die Ergebnisse der theoretischen Modellierung. Im Folgenden wurden jeweils die Niveaudichten nach dem Fermigas-Modell verwendet.

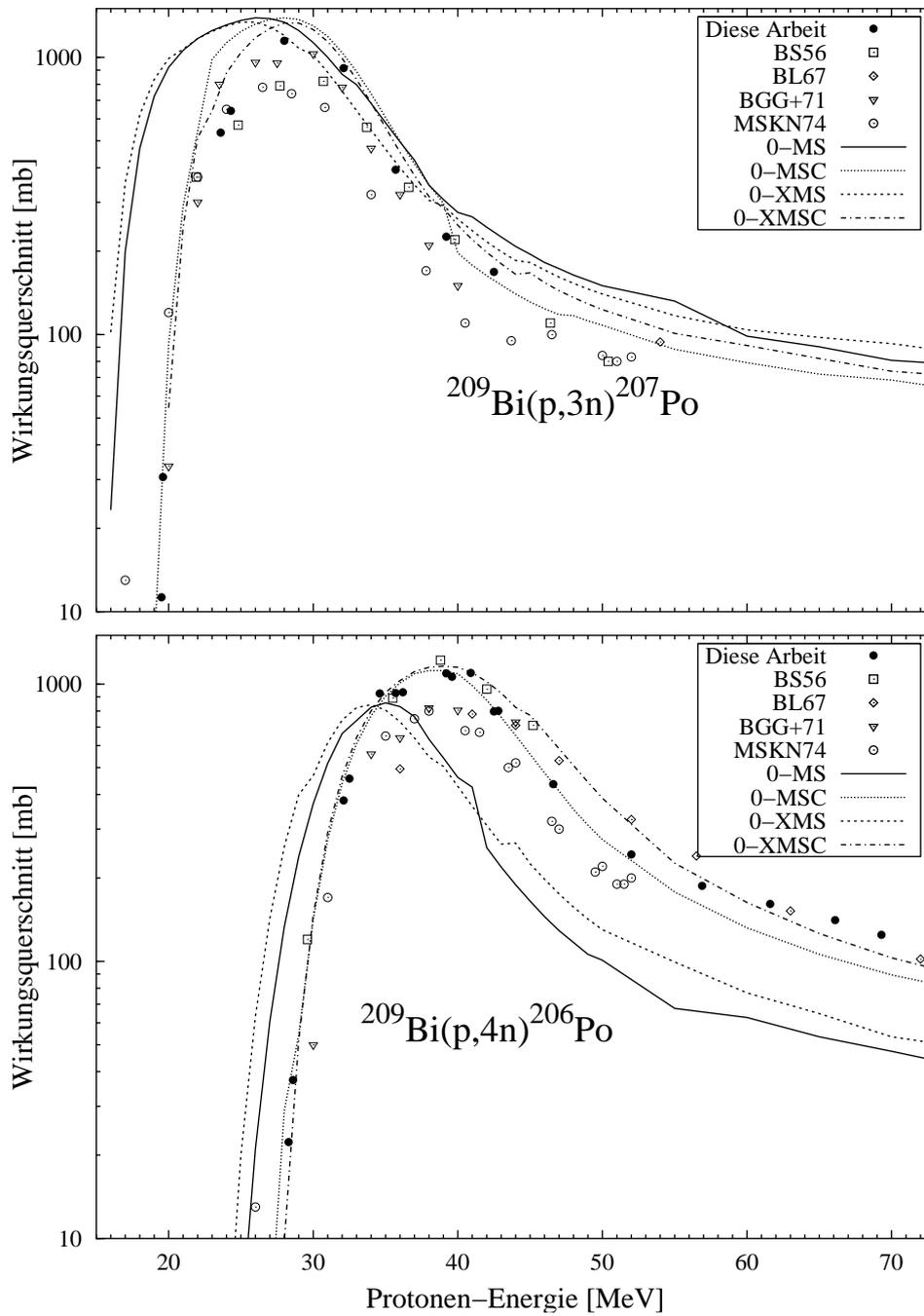
### 6.4.1. (p,xn)-Reaktionen

In den Abbildungen 6.1 und 6.2 werden die Modellrechnungen den experimentellen Werten gegenübergestellt.

Die qualitative Wiedergabe der Anregungsfunktionen gelingt recht gut, sowohl was die Lage als auch die Höhe des Maximums angeht. In allen vier Abbildungen ist jedoch der starke Einfluss der Berechnungsart für die Massen zu erkennen. Die betrifft zunächst die Berechnung der Schwellenenergie für die beiden Reaktionen am Bismut. Die deutlich bessere Reproduktion der experimentellen Ergebnisse gelingt unter Berücksichtigung der Schalen- und Paarungseffekte. Die Unterschiede betragen etwa 4-5 MeV.

Bei beiden dargestellten Reaktionen am Blei ist dieser Effekt geringer, da sich hier eine unzureichende Berechnung für ein Isotop durch die Beiträge der übrigen Isotope ausgleichen kann. Allerdings sind auch hier in der Form der Anregungsfunktion deutliche Einflüsse zu erkennen, wie ab etwa 17 MeV gut zu erkennen ist. Im weiteren Verlauf der berechneten Anregungsfunktionen lässt sich eine größere Diskrepanz ohne Einbeziehung der Paarung und des Schaleneffektes erkennen. Die experimentellen Daten werden mit Ausnahme des  $^{207}\text{Po}$  zum Teil um den Faktor 3 unterschätzt.

Vergleicht man die experimentellen Wirkungsquerschnitte dieser Arbeit für die Produktion des  $^{206}\text{Bi}$  mit den Werten nach Lagunas-Solar et al. [LSCN<sup>+</sup>87], so zeigt sich außerhalb des Bereichs zwischen 22 und 33 MeV eine gute Übereinstimmung beider Datensätze mit dem Verlauf der theoretischen Anregungsfunktion nach MSC und XMSC. Zwischen 22 und 33 MeV zeigen die Daten nach [LSCN<sup>+</sup>87] ein lokales Minimum (siehe auch Abbildung 5.11 für eine vergrößerte Darstellung). Dieses deutet sich aber in keiner der modellierten Anregungsfunktionen an, so dass hier die Vermutung einer fehlerhaften Messung durch Lagunas-Solar et al. nahe liegt. Die Diskrepanzen



**Abbildung 6.1.:** Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion der Reaktionen  $^{209}\text{Bi}(p,3n)^{207}\text{Po}$  (oben) und  $^{209}\text{Bi}(p,4n)^{206}\text{Po}$  (unten) in Abhängigkeit von der verwendeten Massenberechnungsart. Die Unsicherheiten der experimentellen Werte sind zur Übersichtlichkeit nicht eingetragen.

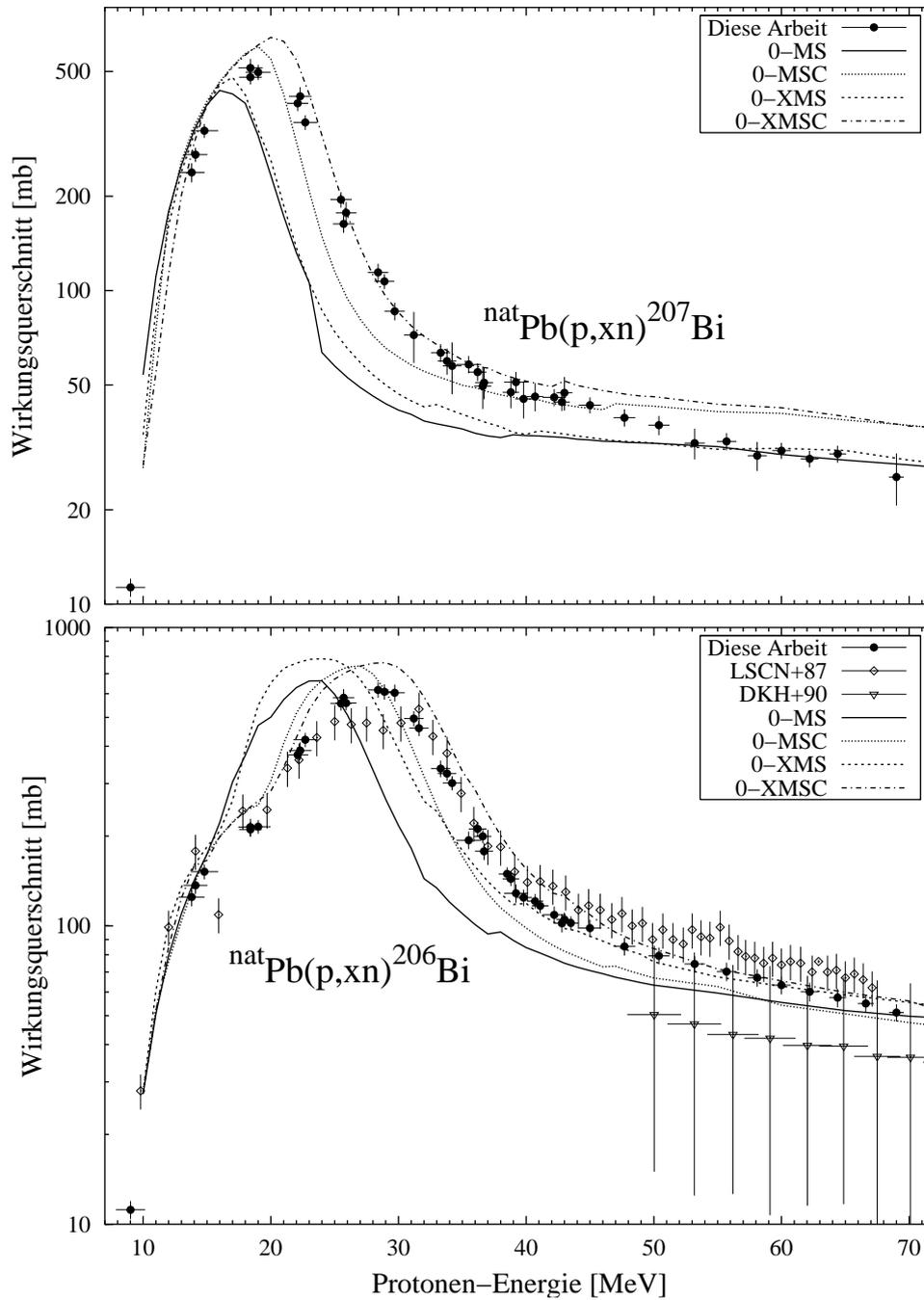


Abbildung 6.2.: Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion der Reaktionen  ${}^{nat}\text{Pb}(p,xn){}^{207}\text{Bi}$  (oben) und  ${}^{nat}\text{Pb}(p,xn){}^{206}\text{Bi}$  (unten) in Abhängigkeit von der verwendeten Massenberechnungsart.

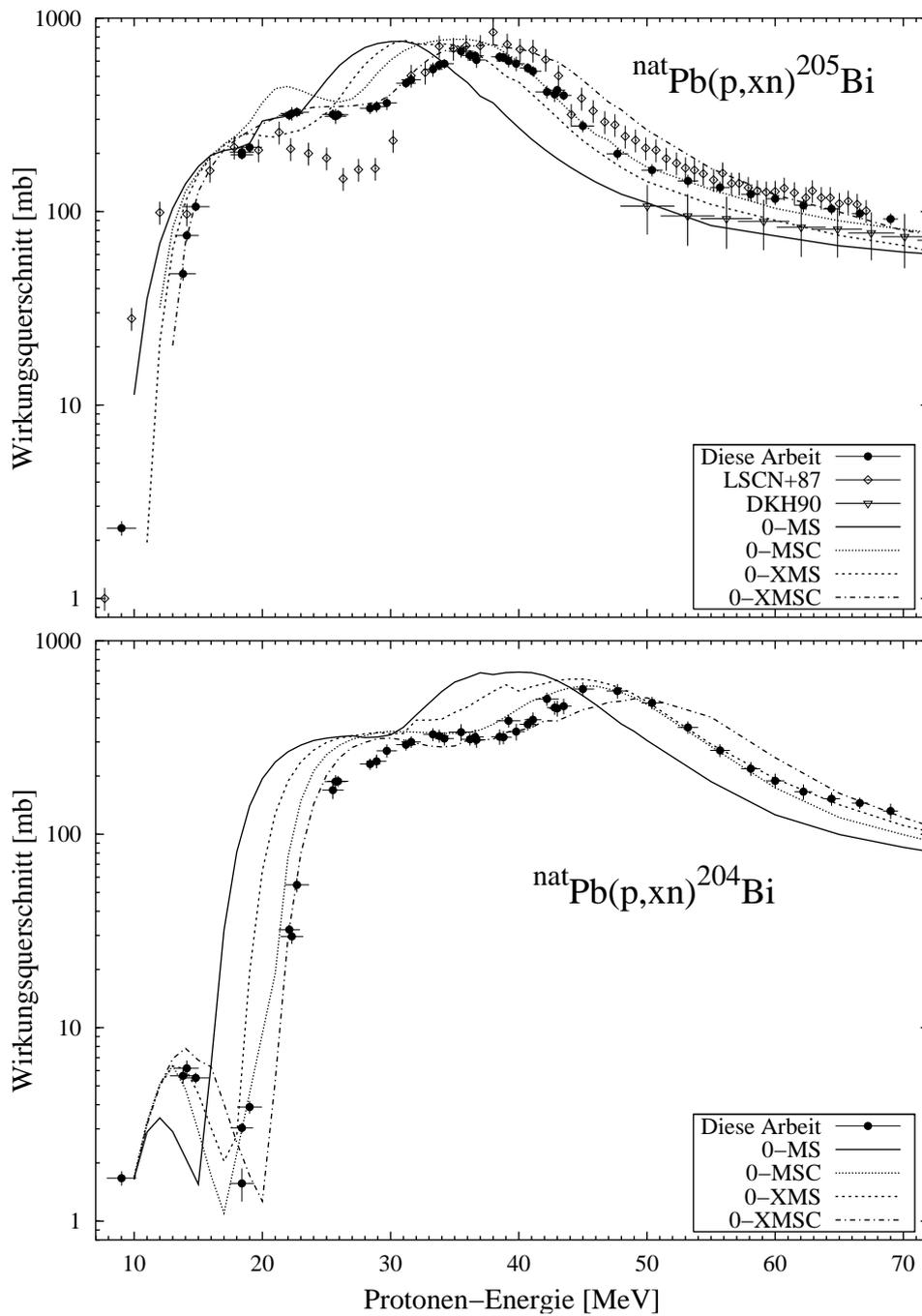


Abbildung 6.3.: Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion der Reaktionen  ${}^{nat}\text{Pb}(p,xn){}^{205}\text{Bi}$  (oben) und  ${}^{nat}\text{Pb}(p,xn){}^{204}\text{Bi}$  (unten) in Abhängigkeit von der verwendeten Massenberechnungsart.

bei höheren Energien lassen sich auch mit den Modellrechnungen nicht aufklären, obgleich die Werte dieser Arbeit besser zu den theoretischen Ergebnissen passen.

In Abbildung 6.3 werden die theoretischen Berechnungen zur Produktion von  $^{204,205}\text{Pb}$  aus Blei vorgestellt. Für beide Reaktionen gelingt die Vorhersage der niedrigsten Schwellenenergie, das Einsetzen der Reaktionen über die schwereren Bleiisotope konnte dagegen nicht korrekt berechnet werden. Auch für diese Reaktionen fallen bei den Modellierungen nach MS und XMS deutliche Abweichungen auf. Für Energien unter 35 MeV liegt die Vorhersage durch XMSC in völliger Übereinstimmung mit den Werten dieser Arbeit, darüber gibt die Modellierung mittels MSC die experimentellen Daten am besten wieder. Auffallend ist wiederum die Abweichung der Daten nach [LSCN<sup>+</sup>87] zwischen 20 und 30 MeV für die Reaktion  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{205}\text{Bi}$ , die durch keine theoretisch berechnete Anregungsfunktion belegt wird. Die Produktion von  $^{204}\text{Bi}$  aus  $^{204}\text{Pb}$  wird durch die Modellrechnungen (außer nach MS) gut wiedergegeben.

In Abbildung 6.4 ist der Vergleich zwischen den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit und den theoretischen Rechnungen für die Reaktion  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{203}\text{Bi}$  dargestellt. Wie auch schon in der vorangegangenen Diskussion der (p,xn)-Reaktionen zeigt sich bei den Berechnungen über MS die größte Abweichung zu den gemessenen Daten. Die übrigen Modellrechnungen geben die Wirkungsquerschnitte dieser Arbeit gut wieder. Wie auch im Fall der Reaktion  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{204}\text{Bi}$  sind die Anteile der Bleiisotope offensichtlich korrekt modelliert.

### 6.4.2. (p,pxn)-Reaktionen

In Abbildung 6.5 werden in zwei Beispielen für (p,pxn)-Reaktionen die Ergebnisse der theoretischen Modellierung mit den experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitten verglichen.

Im oberen Teil findet sich die Darstellung für die Produktion von  $^{205}\text{Bi}$  aus Bismut. Eindeutig bestätigen die Modellrechnungen für Energien zwischen 45 und 75 MeV die experimentellen Daten dieser Arbeit gegenüber den Werten nach [BL67]. Wiederum zeigt sich die bessere Qualität der Berechnungen mittels der MSC und XMSC Optionen. Es ist allerdings mit keiner Vorgabe möglich, den gemessenen, relativ flachen Verlauf der Anregungsfunktion unterhalb von 35 MeV nachzuvollziehen. Dieser An-

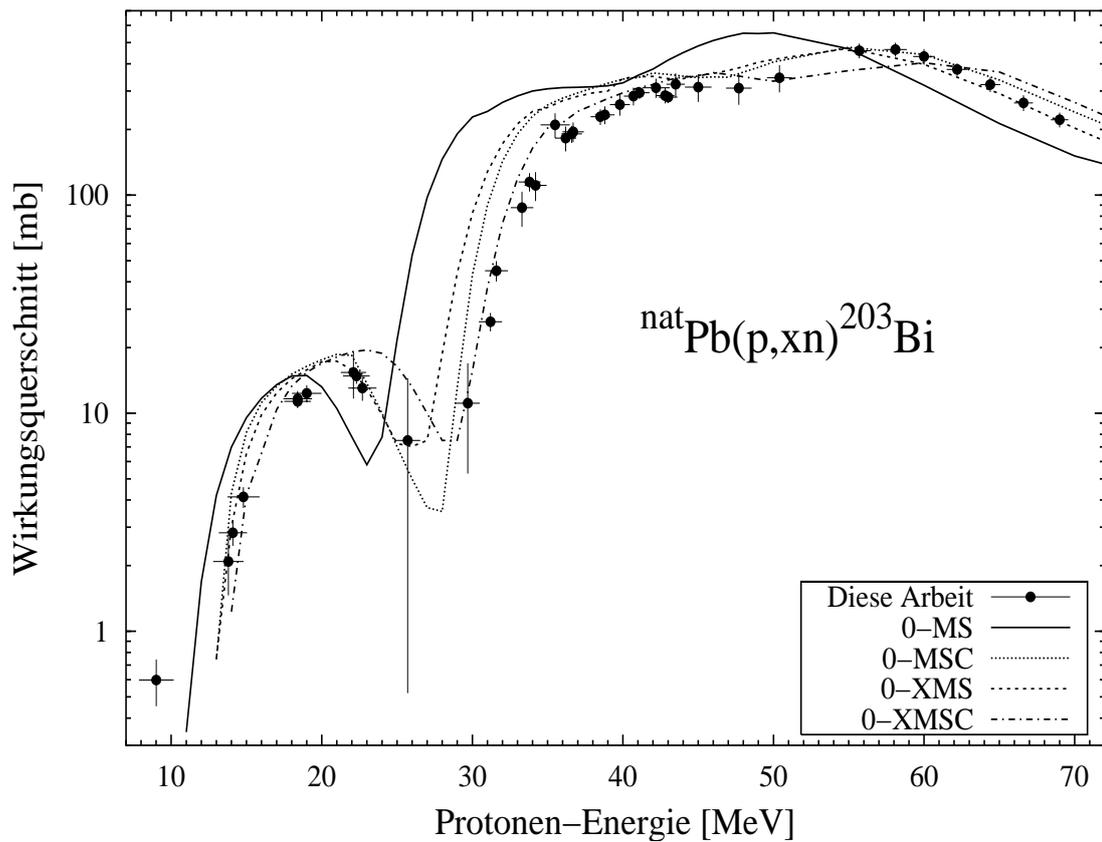
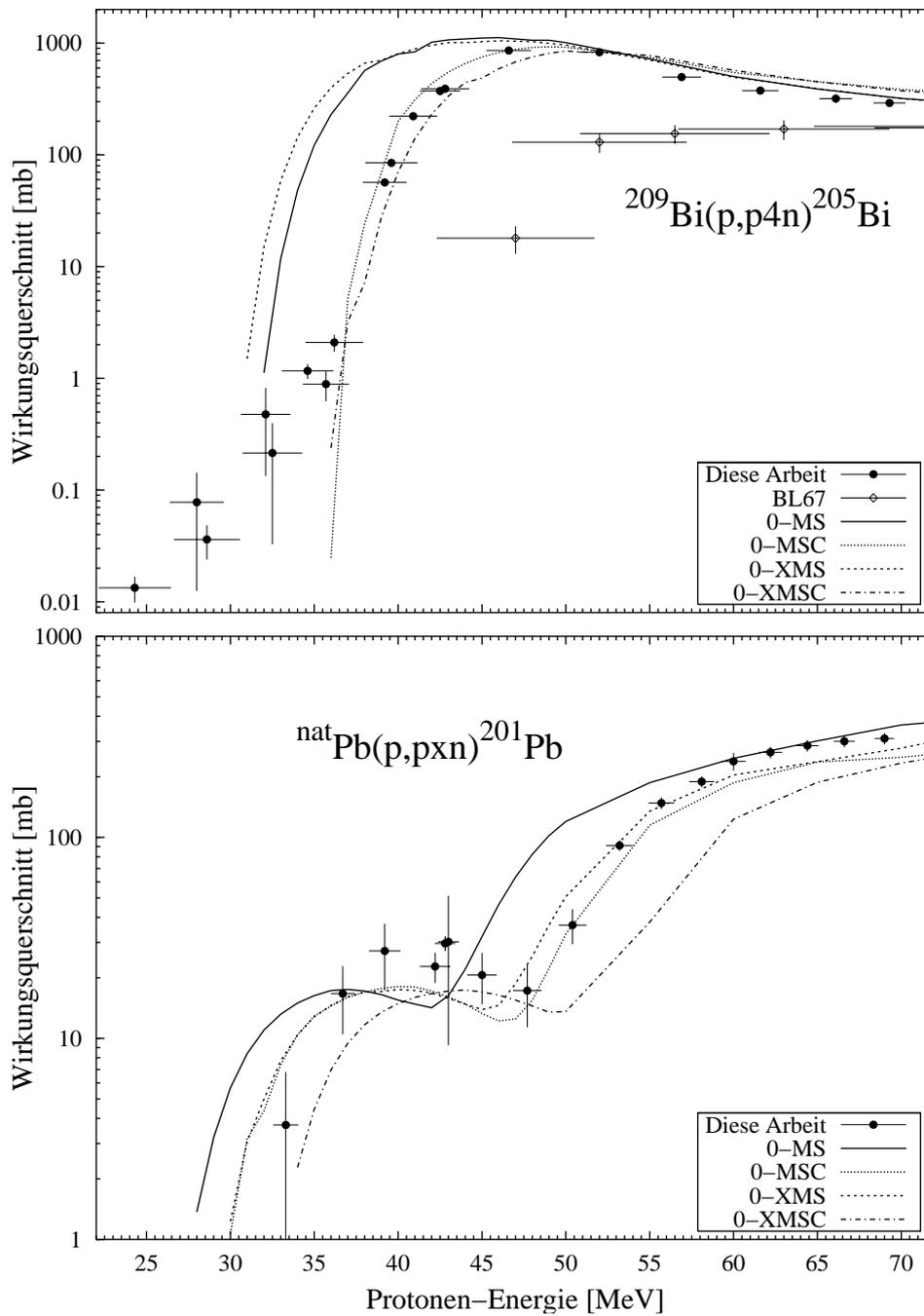


Abbildung 6.4.: Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion der Reaktionen  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,xn){}^{203}\text{Bi}$  in Abhängigkeit von der verwendeten Massenberechnungsart.



**Abbildung 6.5.:** Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion der Reaktionen  $^{209}\text{Bi}(p,p4n)^{205}\text{Bi}$  (oben) und  $^{\text{nat}}\text{Pb}(p,pxn)^{201}\text{Pb}$  (unten) in Abhängigkeit von der verwendeten Massenberechnungsart.

teil wird offensichtlich durch eine (p,d3n) oder (p,t2n)-Reaktion gebildet, die in den Modellrechnungen nicht nach vollzogen werden können.

Die Beurteilung des zweiten dargestellten Vergleichs für die Reaktion  $^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{201}\text{Pb}$  ist vor allem für Energien unterhalb von 47 MeV schwierig, da die vorliegenden experimentellen Daten wegen der kurzen Halbwertszeit des  $^{201}\text{Pb}$  mit relativ großen Unsicherheiten behaftet sind. Die Schwellenenergie der Reaktion wird gut reproduziert.

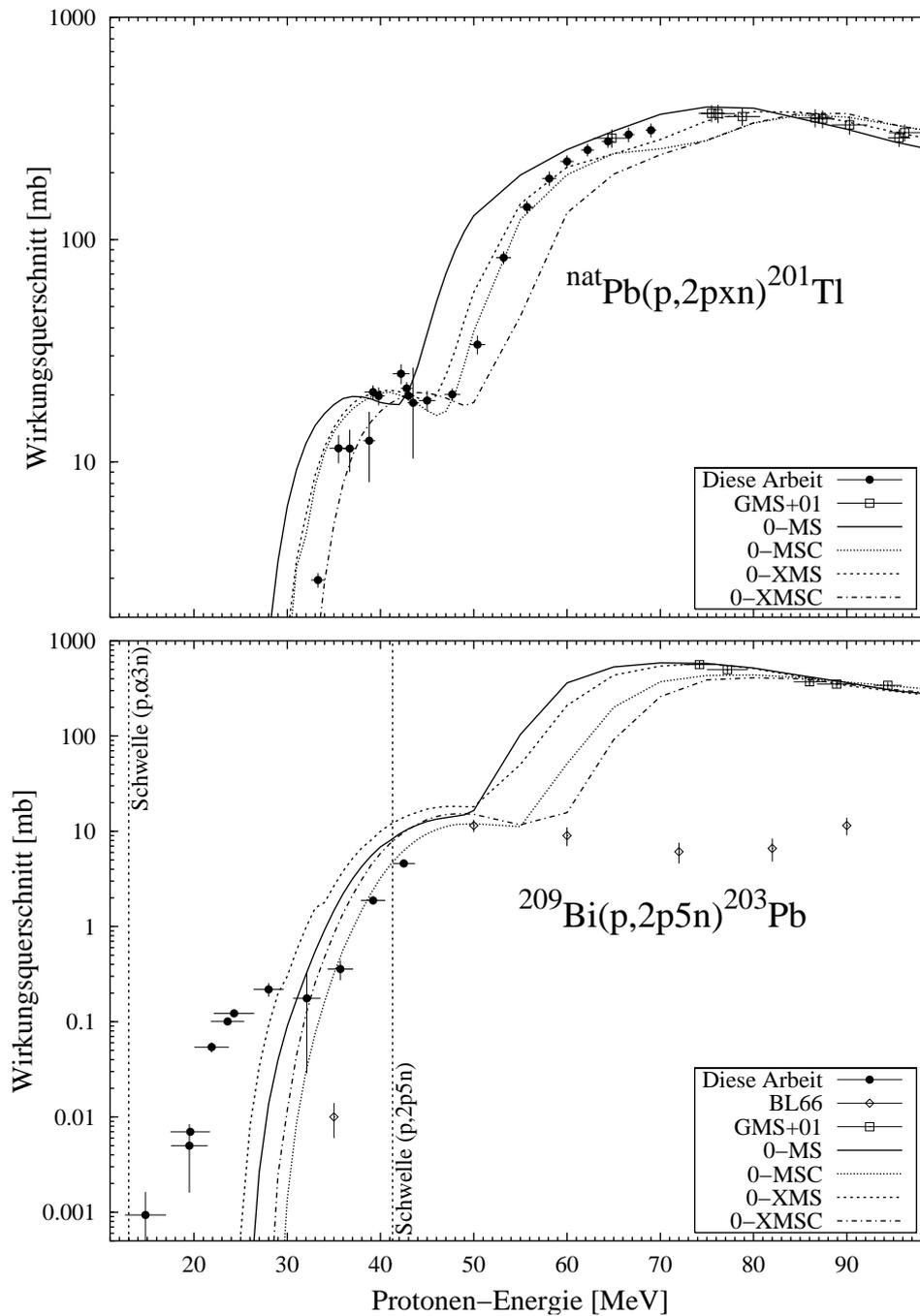
### 6.4.3. (p,2pxn)-Reaktionen

Die Darstellung der Reaktionen  $^{nat}\text{Pb}(p,2pxn)^{201}\text{Tl}$  und  $^{209}\text{Bi}(p,2p5n)^{203}\text{Pb}$  in Abbildung 6.6 verdeutlicht wie zuvor die Grenzen der theoretischen Modellierung. Die Reproduktion der experimentellen Ergebnisse, welche durch die Emission von Komplexteilchen dominiert werden, ist mit den vorliegenden Ansätzen ungenügend. Zwar gelingt die Berechnung der Schwellenenergie für die Produktion des  $^{201}\text{Tl}$  am Blei recht gut, doch wird der Anteil der Reaktion  $^{209}\text{Bi}(p,\alpha 3n)^{203}\text{Pb}$  völlig falsch beschrieben.

In Abbildung 6.6 erkennt man die gute Übereinstimmung der experimentellen Werte dieser Arbeit und von Gloris et al. [GMS<sup>+</sup>01] mit den Ergebnissen von ALICE-IPPE für Energien über 30 MeV. Auch im Vergleich mit den theoretischen Ergebnissen erscheinen die älteren Daten von Bimbot et al. [BL66] somit deutlich zu niedrig.

### 6.4.4. (p,3pxn)-Reaktionen

Abschließend wird die Reaktion  $^{nat}\text{Pb}(p,3pxn)^{203}\text{Hg}$  gezeigt. Hier werden die Schwächen der theoretischen Beschreibung drastisch sichtbar. Die experimentellen Daten werden um mehrere Größenordnungen unterschätzt. Wie bei der Diskussion der experimentellen Ergebnisse schon dargelegt, muss die Produktion des  $^{203}\text{Hg}$  aus Blei als direkt angesehen werden. Es kann daher ein Fehler bei der Summation der berechneten direkten Beiträge ausgeschlossen werden. Vielmehr scheint die Evaporation von Protonen nicht zutreffend modelliert zu werden.



**Abbildung 6.6.:** Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion der Reaktionen  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,2\text{pxn}){}^{201}\text{Tl}$  (oben) und  ${}^{209}\text{Bi}(p,2\text{p}5\text{n}){}^{203}\text{Pb}$  (unten) in Abhängigkeit von der verwendeten Massenberechnungsart. Man beachte den größeren Bereich der Energie gegenüber den vorherigen Darstellungen.

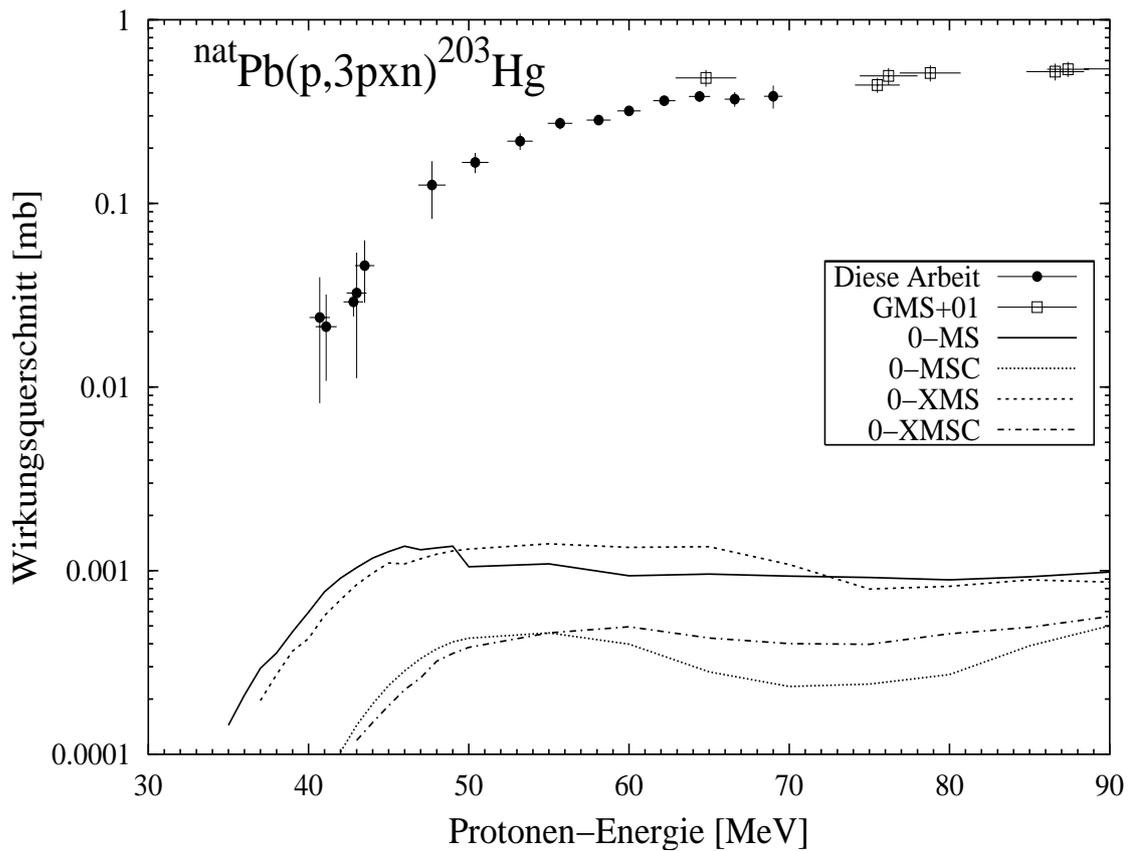


Abbildung 6.7.: Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion der Reaktionen  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,3\text{pxn}){}^{203}\text{Hg}$  in Abhängigkeit von der verwendeten Massenberechnungsart.

Als Fazit der Betrachtungen zum Einfluss der Berechnungsart für die Kernmassen in der Modellierung durch ALICE-IPPE ergibt sich, dass in allen vorgestellten Beispielen die Ergebnisse unter Berücksichtigung von Paarungs- und Schaleneffekten eine bessere Wiedergabe der experimentellen Wirkungsquerschnitte dieser Arbeit darstellen.

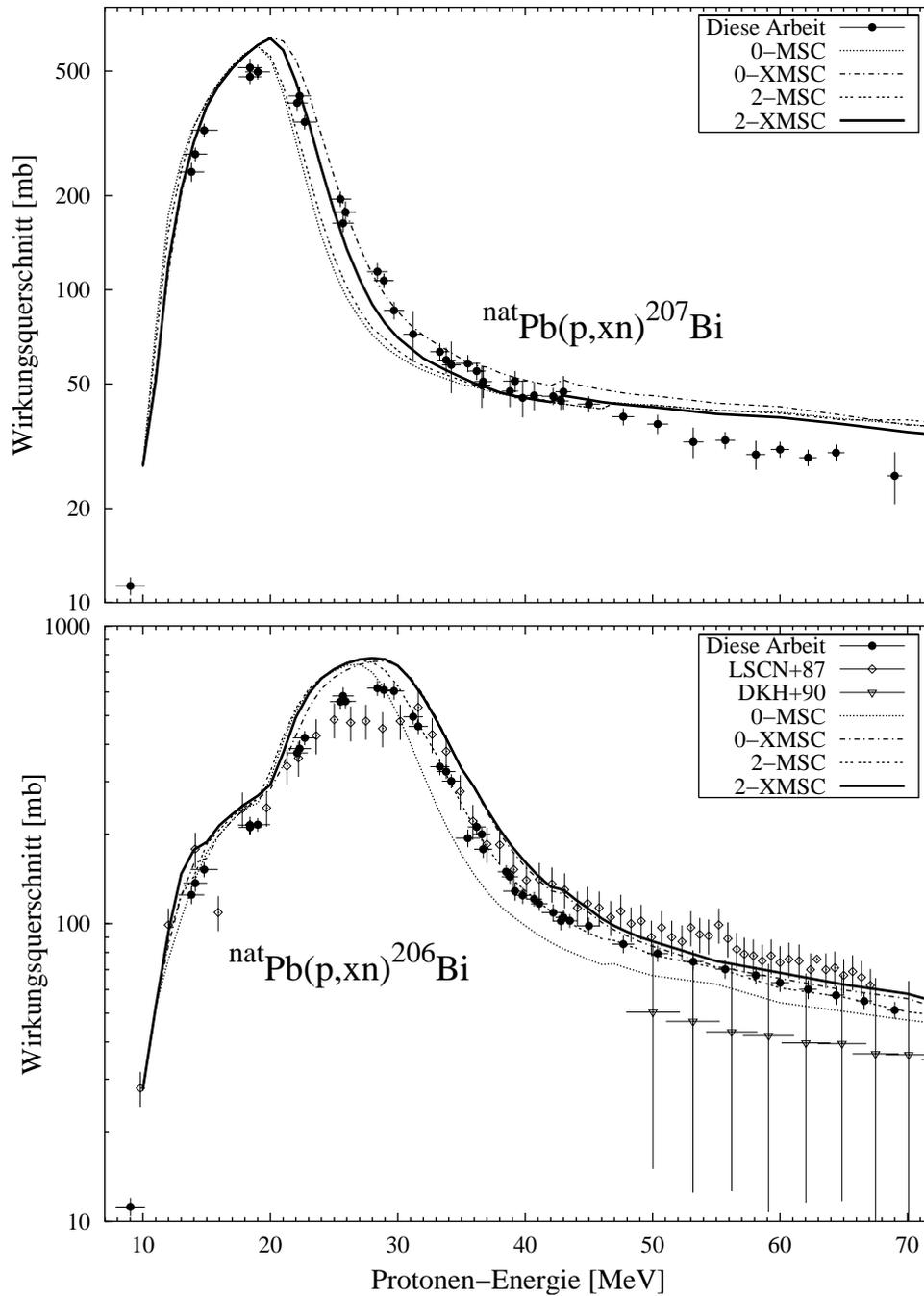
Die Berechnungen der Komplexeilchenemission ist offensichtlich ungenügend, auch wenn die Einbeziehung der PE-Clusteremission schon deutliche Fortschritte bei höheren Energien gebracht hat [Glo98].

## 6.5. Einfluss der Niveaudichten

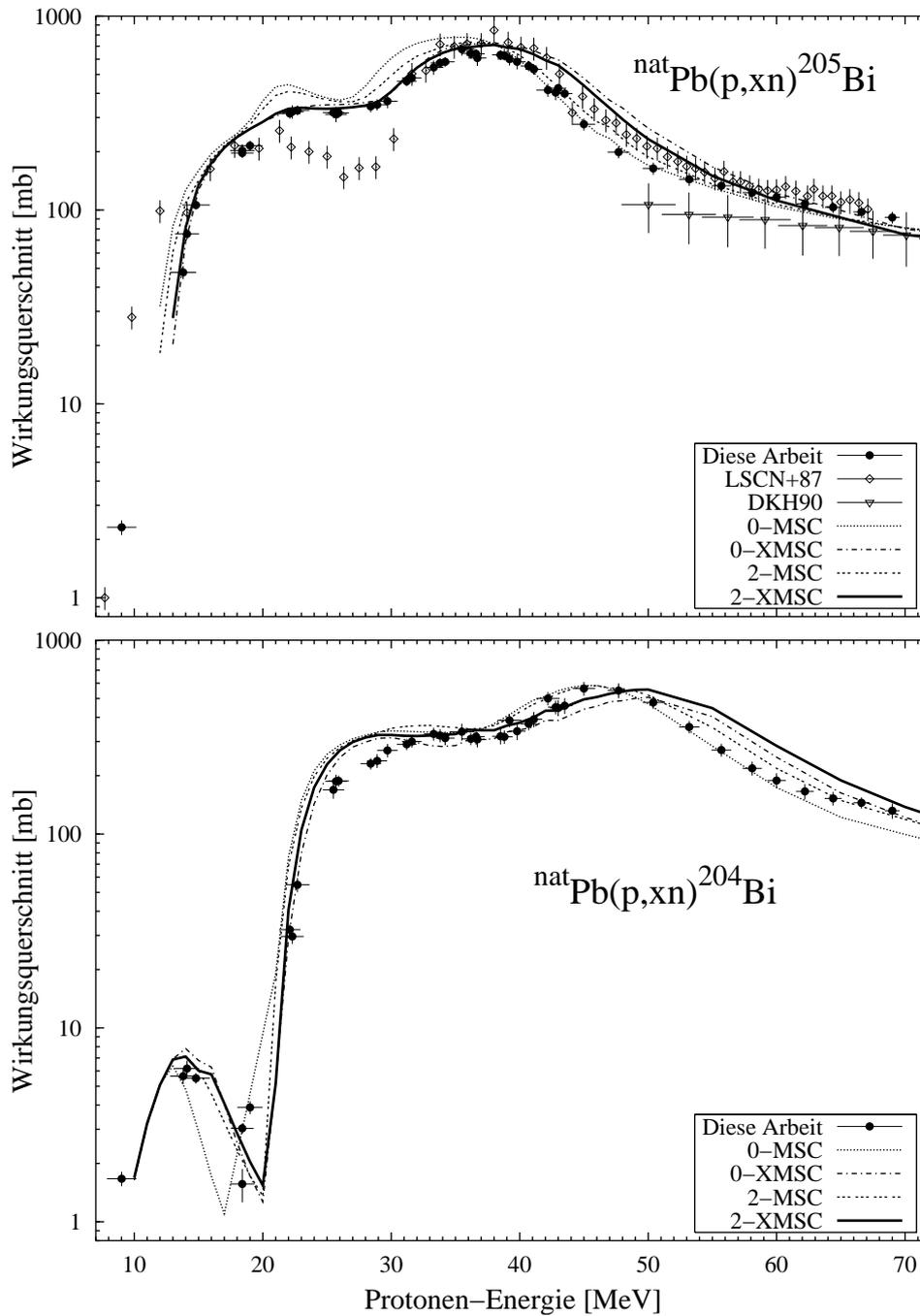
Der Einfluss der verschiedenen Modelle zur Berechnung der Niveaudichten ist nicht so extrem, wie die im vorangegangenen Abschnitt diskutierte Abhängigkeit von der Massenberechnungsart. Dennoch lassen sich die Unterschiede in den Ergebnissen klar erkennen, wie in den folgenden Beispielen deutlich wird. Um die Darstellungen übersichtlich zu halten, zeigen die Abbildungen jeweils nur die Ergebnisse der Berechnungsarten MSC und XMSC, welche die experimentellen Daten am besten wiedergeben.

In Abbildung 6.8 wird der Einfluss der unterschiedlichen Niveaudichten verdeutlicht. Obwohl die beiden Produkte sich nur in einem abgegebenen Neutron unterscheiden, stehen die Ergebnisse der beiden theoretischen Berechnungen völlig verschieden im Verhältnis zu den experimentellen Ergebnissen. Fällt der Variationsbereich im ersten Beispiel der Produktion des  $^{207}\text{Bi}$  noch relativ gering aus und ermöglicht keine eindeutige Bevorzugung, so unterscheiden sich die Ergebnisse für die Reaktion  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{206}\text{Bi}$  augenfällig durch der Wahl der Niveaudichte. Für die Berechnungen nach XMSC sind die Differenzen marginal, wohingegen für die Ergebnisse mit MSC deutliche Diskrepanzen auftreten. Die Niveaudichten nach Ignatyuk [IST75] geben die experimentellen Werte dieser Arbeit wesentlich besser wieder, als die Modellierung durch die Niveaudichten des Fermigasmodells.

Abbildung 6.9 zeigt zwei weitere Vergleiche für die Reaktionen  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{204/205}\text{Bi}$ . Wiederum ist der Einfluss der Niveaudichten nicht so groß wie der Effekt der gewählten Massenberechnungsart. Bis etwa 38 MeV werden die Daten dieser Arbeit



**Abbildung 6.8.:** Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion der Reaktionen  ${}^{nat}\text{Pb}(p,xn){}^{207}\text{Bi}$  (oben) und  ${}^{nat}\text{Pb}(p,xn){}^{206}\text{Bi}$  (unten) in Abhängigkeit von der verwendeten Niveaudichte (Fermigas „0-“, Ignatyuk „2-“).



**Abbildung 6.9.:** Experimentelle und theoretische Anregungsfunktion der Reaktionen  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,xn){}^{205}\text{Bi}$  (oben) und  ${}^{\text{nat}}\text{Pb}(p,xn){}^{204}\text{Bi}$  (unten) in Abhängigkeit von der verwendeten Niveaudichte (Fermigas „0-“, Ignatyuk „2-“).

am besten durch die Berechnung 0-MSC wiedergegeben, für Energien darunter erscheint die theoretische Modellierung über den Parametersatz 2-XMSC näher an den experimentellen Werten.

Auffällig ist sowohl in Abbildung 6.8 als auch in Abbildung 6.9, dass die experimentelle Anregungsfunktion von Lagunas-Solar et al. [LSCN<sup>+</sup>87] für die Reaktionen  $^{nat}\text{Pb}(p,xn)^{205/206}\text{Bi}$  mit keiner der durchgeführten theoretischen Berechnungen in ihrer Form bestätigt werden kann. Auch die Werte nach Deptuła et al. [DKK<sup>+</sup>90] können durch die Modellierungen mit ALICE-IPPE nicht unterstützt werden. Dies festigt die Vermutung, dass die Abweichungen um bis zu 50 % gegenüber den Werten dieser Arbeit auf Probleme in der experimentellen Technik von Deptuła et al. zurückzuführen sind.

## 6.6. Bewertung der Modellrechnungen

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass sich durch die derzeitigen Modellrechnungen mit ALICE-IPPE nur für targetnahe Produkte eine befriedigende Genauigkeit erreichen lässt. Die Wahl der Massenberechnungsart stellt dabei den entscheidenden Parameter dar. Eine Verbesserung der zugrunde liegenden Tabellen zur Massenberechnung unter Einbeziehung der neuesten Daten erscheint dringend nötig. Der Einfluss der Niveaudichtenformulierung ist nicht eindeutig zugunsten eines bestimmten Modells zu entscheiden.

Mit der Anzahl der emittierten Nukleonen steigt die Unzuverlässigkeit der Vorhersagen durch die Modelle. Zwar hat die Einbeziehung von PE-Clusteremission die Qualität deutlich verbessert, es sind jedoch deutliche Weiterentwicklungen nötig, um eine befriedigende Qualität erreichen zu können. Die fehlende Berücksichtigung der Spaltung in den derzeitigen Versionen von ALICE schränkt die Aussagekraft dieser Berechnungen ebenfalls stark ein.

## 7. Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden in einer Vielzahl von Dünntarget-Bestrahlungsexperimenten mehr als 660 Wirkungsquerschnitte für die Protonen-induzierte Produktion von radioaktiven Restkernen für Energien zwischen 9 und 71 MeV in Blei und Bismut bestimmt. Damit stehen für viele Reaktionen erstmals komplette Anregungsfunktionen zur Verfügung, welche für die Planung von neuartigen beschleunigergestützten Systemen und zur Validierung von theoretischen Modellrechnungen von großem Interesse sind.

Für das Nuklid  $^{205}\text{Bi}$  wurde aufgrund der zunächst widersprüchlichen Ergebnisse eine Neubestimmung der Halbwertszeit vorgenommen. Diese beträgt nach den Ergebnissen dieser Arbeit  $14.87 \pm 0.12$  Tage, dies entspricht einer Abweichung von etwa 3% gegenüber dem bisher bekannten Literaturwert.

Die experimentellen Ergebnisse wurden mittels eines neu entwickelten Auswertungssystems gewonnen. Im Vergleich mit bestehenden Daten im Bereich höherer Energien zeigen die Ergebnisse eine sehr gute Übereinstimmung. Gegenüber älteren Literaturdaten im Energiebereich dieser Arbeit konnten bestehende Diskrepanzen geklärt werden.

Der Vergleich der theoretischen Modellrechnungen des Programms ALICE-IPPE mit den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit zeigt für targetnahe Produkte je nach Berechnungsart im Allgemeinen eine gute Übereinstimmung. Den größten Einfluss auf die Ergebnisse hat die Wahl der Berechnungsart für die Kernmassen. Dabei konnten eindeutig bei der Berechnung unter Berücksichtigung von Paarung und Schaleneffekten die experimentellen Daten besser wiedergegeben werden. Jedoch offenbaren

sich für Produkte mit größeren Massendifferenzen zum Targetelement teilweise Abweichungen von mehr als einem Faktor 100. Wirkungsquerschnitte von Spaltprodukten können mit dem derzeitigen System überhaupt nicht berechnet werden.

Trotz des hohen Aufwands ist die experimentelle Bestimmung von Wirkungsquerschnitten mit hoher Genauigkeit für die Produktion von Restkernen in Protoneninduzierten Reaktionen ohne eine umfassende Verbesserung der theoretischen Modelle unumgänglich.

# Anhang



# A. Wirkungsquerschnitte aus Blei und Bismut

## A.1. Vorbemerkungen

Auf den nächsten Seiten sind alle in dieser Arbeit ermittelten Wirkungsquerschnitte für die Targetelemente Blei und Bismut tabelliert, die in insgesamt 6 Bestrahlungsexperimenten mit Einschussenergien von 45 und 72 MeV am PSI bestimmt wurden. Auf eine Auflistung aller verwendeten nuklearen Daten wird hier verzichtet, sie entstammen bis auf die in dieser Arbeit bestimmte Halbwertszeit des  $^{205}\text{Bi}$  aus [Wes00].

Für jede Reaktion ist eine getrennte Tabelle aufgeführt. Der Aufbau der Tabellen setzt sich jeweils wie folgt zusammen:

- ◇ In der Kopfzeile wird in der linken Hälfte die Reaktion angegeben. Die Angaben der Reaktionen sind dabei als reine Nukleonenbilanzen zu verstehen. Nur in wenigen Fällen (z. B.  $^{209}\text{Bi}(p,\alpha 2n)^{203}\text{Pb}$  unterhalb 35 MeV) ist es mit den Methoden dieser Arbeit möglich, verschiedene Reaktionskanäle zu diskriminieren. Auf der rechten Seite ist angegeben, ob die Produktion des Restkerns kumulativ („Cum“) oder direkt („Ind“) erfolgt.
- ◇ Anschließend folgen die ermittelten Daten, jeweils mit der Angabe der Protonenenergie und deren Unsicherheit in MeV sowie dem Wirkungsquerschnitt mit dessen Unsicherheit in mb.

## A.2. Wirkungsquerschnitte aus Blei

$^{nat}\text{Pb}(p,f)^{95}\text{Zr}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
33.3 ± 0.8	0.0354 ±	0.0111	
34.2 ± 0.7	0.0360 ±	0.0318	
36.7 ± 0.7	0.0584 ±	0.0107	
38.5 ± 0.6	0.0547 ±	0.0424	
38.8 ± 0.6	0.0539 ±	0.0487	
39.8 ± 0.7	0.0910 ±	0.0139	
41.1 ± 0.7	0.128 ±	0.035	
42.8 ± 0.6	0.128 ±	0.026	
43.5 ± 0.6	0.156 ±	0.038	
45.0 ± 0.9	0.236 ±	0.031	
47.7 ± 0.9	0.389 ±	0.024	
50.4 ± 0.8	0.422 ±	0.029	
53.2 ± 0.8	0.572 ±	0.092	
55.7 ± 0.8	0.613 ±	0.073	
58.1 ± 0.7	0.681 ±	0.220	
60.0 ± 0.7	0.752 ±	0.153	
62.2 ± 0.7	0.933 ±	0.078	
64.4 ± 0.7	1.05 ±	0.07	
66.6 ± 0.6	1.13 ±	0.07	
69.0 ± 0.6	1.39 ±	0.10	

$^{nat}\text{Pb}(p,f)^{99}\text{Mo}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
45.0 ± 0.9	0.447 ±	0.319	
47.7 ± 0.9	0.392 ±	0.072	
50.4 ± 0.8	1.17 ±	0.09	
53.2 ± 0.8	1.21 ±	0.33	
58.1 ± 0.7	0.926 ±	0.337	
60.0 ± 0.7	2.51 ±	0.15	
62.2 ± 0.7	1.62 ±	0.10	
64.4 ± 0.7	1.91 ±	0.12	
66.6 ± 0.6	2.44 ±	0.29	
69.0 ± 0.6	1.24 ±	0.13	

$^{nat}\text{Pb}(p,f)^{103}\text{Ru}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
31.2 ± 0.8	0.0235 ±	0.0226	
33.8 ± 0.7	0.0447 ±	0.0254	
34.2 ± 0.7	0.0431 ±	0.0248	
36.2 ± 0.7	0.0622 ±	0.0214	
36.6 ± 0.7	0.0682 ±	0.0283	
36.7 ± 0.7	0.0622 ±	0.0234	
38.5 ± 0.6	0.103 ±	0.035	
38.8 ± 0.6	0.130 ±	0.037	
39.8 ± 0.7	0.115 ±	0.015	
40.7 ± 0.6	0.158 ±	0.036	
41.1 ± 0.7	0.130 ±	0.031	
42.8 ± 0.6	0.183 ±	0.013	
43.0 ± 0.6	0.204 ±	0.029	
43.5 ± 0.6	0.230 ±	0.034	
45.0 ± 0.9	0.268 ±	0.058	
47.7 ± 0.9	0.381 ±	0.036	
50.4 ± 0.8	0.502 ±	0.089	
53.2 ± 0.8	0.641 ±	0.062	
55.7 ± 0.8	0.800 ±	0.066	
58.1 ± 0.7	0.860 ±	0.090	
60.0 ± 0.7	0.913 ±	0.054	
62.2 ± 0.7	1.07 ±	0.06	
64.4 ± 0.7	1.27 ±	0.09	
66.6 ± 0.6	1.38 ±	0.18	
69.0 ± 0.6	1.53 ±	0.10	

$^{nat}\text{Pb}(p,f)^{106}\text{Ru}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
36.7 ± 0.7	0.253 ±	0.156	
43.5 ± 0.6	0.784 ±	0.374	
55.7 ± 0.8	1.42 ±	0.38	
62.2 ± 0.7	1.08 ±	0.21	
66.6 ± 0.6	1.76 ±	0.23	
69.0 ± 0.6	1.88 ±	0.29	

$^{nat}\text{Pb}(p,f)^{105}\text{Rh}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
64.4 ± 0.7	3.77 ±	3.18	
69.0 ± 0.6	1.79 ±	1.02	

$^{nat}\text{Pb}(p,f)^{110m}\text{Ag}$		Ind	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
66.6 ± 0.6	0.0214 ±	0.0033	

A.2. WIRKUNGSQUERSCHNITTE AUS BLEI

$^{nat}\text{Pb}(p,f)^{124}\text{Sb}$		Ind	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$39.8 \pm 0.7$	0.0169	$\pm$	0.0067
$50.4 \pm 0.8$	0.0365	$\pm$	0.0131
$55.7 \pm 0.8$	0.0571	$\pm$	0.0206
$60.0 \pm 0.7$	0.0613	$\pm$	0.0118
$62.2 \pm 0.7$	0.0745	$\pm$	0.0075
$64.4 \pm 0.7$	0.0761	$\pm$	0.0254
$66.6 \pm 0.6$	0.0886	$\pm$	0.0054
$69.0 \pm 0.6$	0.0837	$\pm$	0.0078
$69.0 \pm 0.6$	0.0847	$\pm$	0.0089

$^{nat}\text{Pb}(p,f)^{125}\text{Sb}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$66.6 \pm 0.6$	0.178	$\pm$	0.163

$^{nat}\text{Pb}(p,3pxn)^{203}\text{Hg}$		Ind	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$40.7 \pm 0.6$	0.0239	$\pm$	0.0158
$41.1 \pm 0.7$	0.0213	$\pm$	0.0105
$42.8 \pm 0.6$	0.0291	$\pm$	0.0049
$43.0 \pm 0.6$	0.0325	$\pm$	0.0214
$43.5 \pm 0.6$	0.0458	$\pm$	0.0171
$47.7 \pm 0.9$	0.126	$\pm$	0.044
$50.4 \pm 0.8$	0.167	$\pm$	0.021
$53.2 \pm 0.8$	0.218	$\pm$	0.023
$55.7 \pm 0.8$	0.273	$\pm$	0.020
$58.1 \pm 0.7$	0.284	$\pm$	0.017
$60.0 \pm 0.7$	0.319	$\pm$	0.019
$62.2 \pm 0.7$	0.363	$\pm$	0.022
$64.4 \pm 0.7$	0.382	$\pm$	0.025
$66.6 \pm 0.6$	0.370	$\pm$	0.034
$69.0 \pm 0.6$	0.383	$\pm$	0.055

$^{nat}\text{Pb}(p,2pxn)^{200}\text{Tl}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$42.8 \pm 0.6$	2.46	$\pm$	0.67
$43.0 \pm 0.6$	3.27	$\pm$	0.22
$43.5 \pm 0.6$	4.50	$\pm$	0.31
$53.2 \pm 0.8$	32.5	$\pm$	7.1
$55.7 \pm 0.8$	22.3	$\pm$	1.9
$62.2 \pm 0.7$	54.6	$\pm$	10.5
$64.4 \pm 0.7$	94.2	$\pm$	18.8
$66.6 \pm 0.6$	112.	$\pm$	7.
$69.0 \pm 0.6$	156.	$\pm$	10.

$^{nat}\text{Pb}(p,2pxn)^{200}\text{Tl}$		Ind	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$53.2 \pm 0.8$	4.15	$\pm$	2.08
$55.7 \pm 0.8$	14.8	$\pm$	5.7
$60.0 \pm 0.7$	4.29	$\pm$	1.27
$62.2 \pm 0.7$	16.7	$\pm$	2.1
$64.4 \pm 0.7$	16.2	$\pm$	2.1
$66.6 \pm 0.6$	24.6	$\pm$	2.5
$69.0 \pm 0.6$	16.1	$\pm$	1.1

$^{nat}\text{Pb}(p,2pxn)^{201}\text{Tl}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$33.3 \pm 0.8$	2.94	$\pm$	0.22
$35.5 \pm 1.0$	11.5	$\pm$	1.7
$36.7 \pm 0.7$	11.5	$\pm$	2.5
$38.8 \pm 0.6$	12.5	$\pm$	4.4
$39.2 \pm 0.9$	20.6	$\pm$	1.5
$39.8 \pm 0.7$	19.8	$\pm$	1.9
$42.2 \pm 0.9$	24.9	$\pm$	2.6
$42.8 \pm 0.6$	21.4	$\pm$	1.4
$43.0 \pm 0.6$	19.9	$\pm$	1.1
$43.5 \pm 0.6$	18.5	$\pm$	8.1
$45.0 \pm 0.9$	18.9	$\pm$	2.0
$47.7 \pm 0.9$	20.1	$\pm$	1.3
$50.4 \pm 0.8$	33.7	$\pm$	3.2
$53.2 \pm 0.8$	82.9	$\pm$	5.6
$55.7 \pm 0.8$	140.	$\pm$	9.
$58.1 \pm 0.7$	188.	$\pm$	14.
$60.0 \pm 0.7$	225.	$\pm$	15.
$62.2 \pm 0.7$	253.	$\pm$	16.
$64.4 \pm 0.7$	277.	$\pm$	18.
$66.6 \pm 0.6$	297.	$\pm$	23.
$69.0 \pm 0.6$	310.	$\pm$	23.

A. WIRKUNGSQUERSCHNITTE AUS BLEI UND BISMUT

$^{nat}\text{Pb}(p,2pxn)^{202}\text{Tl}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
22.3 ± 0.9	0.104	±	0.077
25.7 ± 0.8	0.495	±	0.050
28.4 ± 0.8	1.08	±	0.41
28.9 ± 0.8	0.934	±	0.305
29.7 ± 0.8	1.17	±	0.21
31.2 ± 0.8	1.31	±	0.41
31.6 ± 0.8	1.55	±	0.08
33.3 ± 0.8	1.83	±	0.11
33.8 ± 0.7	2.03	±	0.21
34.2 ± 0.7	1.88	±	0.11
35.5 ± 1.0	2.54	±	0.18
36.2 ± 0.7	2.19	±	0.36
36.6 ± 0.7	2.39	±	0.21
36.7 ± 0.7	2.26	±	0.19
38.5 ± 0.6	2.54	±	0.32
38.8 ± 0.6	3.11	±	0.22
39.2 ± 0.9	3.51	±	0.32
39.8 ± 0.7	3.07	±	0.24
40.7 ± 0.6	3.44	±	0.21
41.1 ± 0.7	3.62	±	0.23
42.2 ± 0.9	4.58	±	0.27
42.8 ± 0.6	4.04	±	0.33
43.0 ± 0.6	4.36	±	0.23
43.5 ± 0.6	4.44	±	0.25
45.0 ± 0.9	5.86	±	0.35
47.7 ± 0.9	6.70	±	0.41
50.4 ± 0.8	7.39	±	0.48
53.2 ± 0.8	7.96	±	0.54
55.7 ± 0.8	8.08	±	0.53
58.1 ± 0.7	8.11	±	0.54
60.0 ± 0.7	7.94	±	0.50
62.2 ± 0.7	8.14	±	0.52
64.4 ± 0.7	8.33	±	0.52
66.6 ± 0.6	8.65	±	0.60
69.0 ± 0.6	9.09	±	0.58

$^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{200}\text{Pb}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
45.0 ± 0.9	5.70	±	4.95
47.7 ± 0.9	9.67	±	5.14
50.4 ± 0.8	15.1	±	1.3
55.7 ± 0.8	15.8	±	1.9
58.1 ± 0.7	27.1	±	2.1
60.0 ± 0.7	18.6	±	4.5
62.2 ± 0.7	20.1	±	2.5
64.4 ± 0.7	41.3	±	2.9
66.6 ± 0.6	62.8	±	6.9
69.0 ± 0.6	97.4	±	6.9

$^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{201}\text{Pb}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
33.3 ± 0.8	3.71	±	3.10
36.7 ± 0.7	16.7	±	6.2
39.2 ± 0.9	27.2	±	9.9
42.2 ± 0.9	22.8	±	3.9
42.8 ± 0.6	29.7	±	2.5
43.0 ± 0.6	30.2	±	21.0
45.0 ± 0.9	20.7	±	5.9
47.7 ± 0.9	17.3	±	5.9
50.4 ± 0.8	36.6	±	7.2
53.2 ± 0.8	91.1	±	5.5
55.7 ± 0.8	148.	±	10.
58.1 ± 0.7	189.	±	12.
60.0 ± 0.7	239.	±	24.
62.2 ± 0.7	265.	±	17.
64.4 ± 0.7	286.	±	19.
66.6 ± 0.6	300.	±	20.
69.0 ± 0.6	310.	±	20.

A.2. WIRKUNGSQUERSCHNITTE AUS BLEI

$^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{203}\text{Pb}$			Cum	$^{nat}\text{Pb}(p,pxn)^{203}\text{Pb}$			Ind
E [MeV]	$\sigma$ [mb]			E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
9.0 ± 1.1	0.795	±	0.053	14.1 ± 0.9	1.16	±	0.10
13.8 ± 1.0	1.69	±	0.14	14.8 ± 1.1	2.03	±	0.14
14.1 ± 0.9	3.51	±	0.41	18.4 ± 0.9	4.54	±	0.69
14.8 ± 1.1	5.50	±	1.04	22.7 ± 0.9	7.07	±	1.61
18.4 ± 0.9	13.7	±	1.6	31.2 ± 0.8	11.9	±	3.1
18.4 ± 1.0	15.6	±	1.0	31.6 ± 0.8	14.1	±	11.6
19.0 ± 1.0	12.7	±	1.9	33.3 ± 0.8	30.6	±	2.4
22.1 ± 0.8	15.0	±	2.5	33.8 ± 0.7	38.2	±	6.6
22.3 ± 0.9	21.3	±	1.6	34.2 ± 0.7	60.9	±	10.4
22.7 ± 0.9	17.3	±	1.1	35.5 ± 1.0	66.0	±	5.0
25.5 ± 0.8	14.6	±	13.0	36.2 ± 0.7	68.7	±	7.3
25.7 ± 0.8	14.0	±	1.0	36.6 ± 0.7	78.7	±	9.3
25.9 ± 0.8	14.2	±	1.3	36.7 ± 0.7	57.6	±	4.3
28.4 ± 0.8	9.90	±	1.00	38.5 ± 0.6	88.1	±	20.7
28.9 ± 0.8	9.95	±	1.05	38.8 ± 0.6	95.4	±	34.3
29.7 ± 0.8	11.6	±	0.8	39.8 ± 0.7	82.2	±	8.3
31.2 ± 0.8	37.3	±	3.6	40.7 ± 0.6	107.	±	13.
31.6 ± 0.8	57.9	±	11.8	41.1 ± 0.7	103.	±	6.
33.3 ± 0.8	127.	±	8.	42.2 ± 0.9	110.	±	10.
33.8 ± 0.7	152.	±	9.	42.8 ± 0.6	109.	±	9.
34.2 ± 0.7	171.	±	13.	43.0 ± 0.6	147.	±	11.
35.5 ± 1.0	297.	±	19.	43.5 ± 0.6	113.	±	12.
36.2 ± 0.7	250.	±	15.	45.0 ± 0.9	109.	±	11.
36.6 ± 0.7	268.	±	16.	47.7 ± 0.9	135.	±	8.
36.7 ± 0.7	270.	±	21.	50.4 ± 0.8	169.	±	10.
38.8 ± 0.6	335.	±	26.	53.2 ± 0.8	181.	±	22.
39.2 ± 0.9	404.	±	31.	55.7 ± 0.8	198.	±	22.
39.8 ± 0.7	363.	±	28.	58.1 ± 0.7	172.	±	14.
40.7 ± 0.6	389.	±	25.	60.0 ± 0.7	200.	±	30.
41.1 ± 0.7	396.	±	20.	62.2 ± 0.7	205.	±	28.
42.2 ± 0.9	453.	±	34.	64.4 ± 0.7	198.	±	20.
42.8 ± 0.6	422.	±	32.	66.6 ± 0.6	198.	±	16.
43.0 ± 0.6	428.	±	24.	69.0 ± 0.6	187.	±	16.
43.5 ± 0.6	432.	±	25.				
45.0 ± 0.9	453.	±	36.				
47.7 ± 0.9	473.	±	34.				
50.4 ± 0.8	548.	±	42.				
53.2 ± 0.8	631.	±	45.				
55.7 ± 0.8	699.	±	54.				
58.1 ± 0.7	704.	±	55.				
60.0 ± 0.7	673.	±	50.				
62.2 ± 0.7	613.	±	46.				
64.4 ± 0.7	546.	±	39.				
66.6 ± 0.6	484.	±	34.				
69.0 ± 0.6	425.	±	31.				

A. WIRKUNGSQUERSCHNITTE AUS BLEI UND BISMUT

$^{nat}\text{Pb}(\text{p,xn})^{203}\text{Bi}$			Ind	$^{nat}\text{Pb}(\text{p,xn})^{204}\text{Bi}$			Ind
E [MeV]	$\sigma$ [mb]			E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
9.0 ± 1.1	0.598	±	0.145	9.0 ± 1.1	1.67	±	0.14
13.8 ± 1.0	2.09	±	0.63	13.8 ± 1.0	5.64	±	0.51
14.1 ± 0.9	2.83	±	0.36	14.1 ± 0.9	6.17	±	0.61
14.8 ± 1.1	4.13	±	0.45	14.8 ± 1.1	5.50	±	0.34
18.4 ± 0.9	11.3	±	0.8	18.4 ± 1.0	1.57	±	0.31
18.4 ± 1.0	11.6	±	1.0	18.4 ± 0.9	3.03	±	0.19
19.0 ± 1.0	12.3	±	1.1	19.0 ± 1.0	3.89	±	0.29
22.1 ± 0.8	15.4	±	3.7	22.1 ± 0.8	32.2	±	2.1
22.3 ± 0.9	14.8	±	1.2	22.3 ± 0.9	29.6	±	2.5
22.7 ± 0.9	13.0	±	1.6	22.7 ± 0.9	54.7	±	4.6
25.7 ± 0.8	7.50	±	6.98	25.5 ± 0.8	169.	±	17.
29.7 ± 0.8	11.1	±	5.8	25.7 ± 0.8	187.	±	15.
31.2 ± 0.8	26.3	±	2.6	25.9 ± 0.8	188.	±	12.
31.6 ± 0.8	45.0	±	4.8	28.4 ± 0.8	231.	±	16.
33.3 ± 0.8	87.6	±	16.1	28.9 ± 0.8	238.	±	19.
33.8 ± 0.7	115.	±	11.	29.7 ± 0.8	270.	±	22.
34.2 ± 0.7	111.	±	17.	31.2 ± 0.8	290.	±	20.
35.5 ± 1.0	210.	±	27.	31.6 ± 0.8	300.	±	21.
36.2 ± 0.7	182.	±	24.	33.3 ± 0.8	328.	±	25.
36.6 ± 0.7	191.	±	17.	33.8 ± 0.7	322.	±	25.
36.7 ± 0.7	195.	±	20.	34.2 ± 0.7	312.	±	25.
38.5 ± 0.6	229.	±	19.	35.5 ± 1.0	337.	±	34.
38.8 ± 0.6	233.	±	22.	36.2 ± 0.7	310.	±	22.
39.8 ± 0.7	260.	±	29.	36.6 ± 0.7	318.	±	30.
40.7 ± 0.6	284.	±	27.	36.7 ± 0.7	308.	±	28.
41.1 ± 0.7	294.	±	19.	38.5 ± 0.6	319.	±	29.
42.2 ± 0.9	310.	±	32.	38.8 ± 0.6	317.	±	25.
42.8 ± 0.6	286.	±	23.	39.2 ± 0.9	386.	±	30.
43.0 ± 0.6	281.	±	16.	39.8 ± 0.7	339.	±	34.
43.5 ± 0.6	322.	±	40.	40.7 ± 0.6	370.	±	27.
45.0 ± 0.9	313.	±	45.	41.1 ± 0.7	391.	±	35.
47.7 ± 0.9	309.	±	50.	42.2 ± 0.9	500.	±	40.
50.4 ± 0.8	345.	±	49.	42.8 ± 0.6	451.	±	37.
55.7 ± 0.8	459.	±	36.	43.0 ± 0.6	447.	±	42.
58.1 ± 0.7	465.	±	34.	43.5 ± 0.6	459.	±	43.
60.0 ± 0.7	432.	±	35.	45.0 ± 0.9	563.	±	47.
62.2 ± 0.7	377.	±	25.	47.7 ± 0.9	550.	±	48.
64.4 ± 0.7	321.	±	24.	50.4 ± 0.8	478.	±	36.
66.6 ± 0.6	265.	±	22.	53.2 ± 0.8	356.	±	26.
69.0 ± 0.6	222.	±	17.	55.7 ± 0.8	271.	±	21.
				58.1 ± 0.7	218.	±	18.
				60.0 ± 0.7	189.	±	17.
				62.2 ± 0.7	166.	±	15.
				64.4 ± 0.7	153.	±	12.
				66.6 ± 0.6	145.	±	10.
				69.0 ± 0.6	132.	±	12.

A.2. WIRKUNGSQUERSCHNITTE AUS BLEI

$^{nat}\text{Pb}(\text{p},\text{xn})^{205}\text{Bi}$				$^{nat}\text{Pb}(\text{p},\text{xn})^{206}\text{Bi}$			
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		Ind	E [MeV]	$\sigma$ [mb]		Ind
9.0 ± 1.1	2.31	±	0.20	9.0 ± 1.1	11.2	±	0.8
13.8 ± 1.0	47.7	±	3.7	13.8 ± 1.0	125.	±	9.
14.1 ± 0.9	75.2	±	4.8	14.1 ± 0.9	137.	±	9.
14.8 ± 1.1	106.	±	6.	14.8 ± 1.1	152.	±	9.
18.4 ± 0.9	197.	±	10.	18.4 ± 0.9	210.	±	12.
18.4 ± 1.0	203.	±	16.	18.4 ± 1.0	214.	±	14.
19.0 ± 1.0	215.	±	13.	19.0 ± 1.0	215.	±	11.
22.1 ± 0.8	315.	±	19.	22.1 ± 0.8	374.	±	23.
22.3 ± 0.9	322.	±	26.	22.3 ± 0.9	387.	±	25.
22.7 ± 0.9	327.	±	19.	22.7 ± 0.9	420.	±	23.
25.5 ± 0.8	318.	±	20.	25.5 ± 0.8	557.	±	30.
25.7 ± 0.8	312.	±	28.	25.7 ± 0.8	582.	±	40.
25.9 ± 0.8	317.	±	18.	25.9 ± 0.8	558.	±	30.
28.4 ± 0.8	342.	±	23.	28.4 ± 0.8	618.	±	36.
28.9 ± 0.8	349.	±	23.	28.9 ± 0.8	609.	±	36.
29.7 ± 0.8	364.	±	29.	29.7 ± 0.8	604.	±	39.
31.2 ± 0.8	462.	±	27.	31.2 ± 0.8	496.	±	29.
31.6 ± 0.8	480.	±	30.	31.6 ± 0.8	460.	±	27.
33.3 ± 0.8	544.	±	46.	33.3 ± 0.8	337.	±	22.
33.8 ± 0.7	573.	±	33.	33.8 ± 0.7	324.	±	18.
34.2 ± 0.7	582.	±	33.	34.2 ± 0.7	301.	±	17.
35.5 ± 1.0	675.	±	49.	35.5 ± 1.0	194.	±	13.
36.2 ± 0.7	643.	±	39.	36.2 ± 0.7	211.	±	12.
36.6 ± 0.7	639.	±	36.	36.6 ± 0.7	200.	±	11.
36.7 ± 0.7	608.	±	55.	36.7 ± 0.7	178.	±	12.
38.5 ± 0.6	631.	±	36.	38.5 ± 0.6	149.	±	8.
38.8 ± 0.6	627.	±	36.	38.8 ± 0.6	144.	±	8.
39.2 ± 0.9	601.	±	45.	39.2 ± 0.9	129.	±	9.
39.8 ± 0.7	582.	±	51.	39.8 ± 0.7	124.	±	8.
40.7 ± 0.6	553.	±	33.	40.7 ± 0.6	121.	±	7.
41.1 ± 0.7	532.	±	33.	41.1 ± 0.7	117.	±	6.
42.2 ± 0.9	416.	±	33.	42.2 ± 0.9	109.	±	7.
42.8 ± 0.6	404.	±	35.	42.8 ± 0.6	102.	±	7.
43.0 ± 0.6	425.	±	24.	43.0 ± 0.6	105.	±	6.
43.5 ± 0.6	399.	±	23.	43.5 ± 0.6	102.	±	5.
45.0 ± 0.9	277.	±	20.	45.0 ± 0.9	98.3	±	6.6
47.7 ± 0.9	199.	±	14.	47.7 ± 0.9	85.4	±	5.8
50.4 ± 0.8	164.	±	12.	50.4 ± 0.8	79.4	±	5.1
53.2 ± 0.8	144.	±	11.	53.2 ± 0.8	74.6	±	4.7
55.7 ± 0.8	133.	±	10.	55.7 ± 0.8	70.3	±	5.0
58.1 ± 0.7	123.	±	10.	58.1 ± 0.7	67.0	±	4.5
60.0 ± 0.7	116.	±	8.	60.0 ± 0.7	63.3	±	4.4
62.2 ± 0.7	108.	±	8.	62.2 ± 0.7	60.1	±	4.4
64.4 ± 0.7	103.	±	7.	64.4 ± 0.7	57.5	±	4.1
66.6 ± 0.6	97.8	±	6.9	66.6 ± 0.6	54.9	±	3.6
69.0 ± 0.6	91.5	±	6.4	69.0 ± 0.6	51.2	±	3.4

$^{nat}\text{Pb}(\text{p,xn})^{207}\text{Bi}$		Ind	
E [MeV]		$\sigma$ [mb]	
9.0 ± 1.1	11.3	±	0.8
13.8 ± 1.0	238.	±	17.
14.1 ± 0.9	271.	±	14.
14.8 ± 1.1	324.	±	17.
18.4 ± 0.9	479.	±	25.
18.4 ± 1.0	513.	±	35.
19.0 ± 1.0	497.	±	28.
22.1 ± 0.8	396.	±	22.
22.3 ± 0.9	417.	±	29.
22.7 ± 0.9	344.	±	19.
25.5 ± 0.8	195.	±	11.
25.7 ± 0.8	163.	±	10.
25.9 ± 0.8	177.	±	15.
28.4 ± 0.8	114.	±	7.
28.9 ± 0.8	107.	±	6.
29.7 ± 0.8	85.9	±	5.5
31.2 ± 0.8	72.1	±	13.4
33.3 ± 0.8	63.4	±	4.1
33.8 ± 0.7	59.6	±	5.7
34.2 ± 0.7	57.5	±	10.8
35.5 ± 1.0	58.2	±	3.7
36.2 ± 0.7	55.0	±	3.5
36.6 ± 0.7	49.6	±	7.7
36.7 ± 0.7	50.9	±	5.9
38.8 ± 0.6	47.4	±	5.2
39.2 ± 0.9	51.1	±	4.0
39.8 ± 0.7	45.1	±	6.0
40.7 ± 0.6	46.0	±	4.8
42.2 ± 0.9	45.7	±	2.9
42.8 ± 0.6	44.2	±	2.8
43.0 ± 0.6	47.2	±	5.8
45.0 ± 0.9	43.1	±	2.6
47.7 ± 0.9	39.3	±	2.5
50.4 ± 0.8	37.2	±	2.6
53.2 ± 0.8	32.6	±	3.7
55.7 ± 0.8	33.0	±	2.1
58.1 ± 0.7	29.8	±	3.2
60.0 ± 0.7	30.9	±	1.8
62.2 ± 0.7	29.1	±	1.8
64.4 ± 0.7	30.1	±	1.9
69.0 ± 0.6	25.5	±	4.8

### A.3. Wirkungsquerschnitte aus Bismut

$^{209}\text{Bi}(\text{p,f})^{95}\text{Zr}$		Cum	
E [MeV]		$\sigma$ [mb]	
32.1 ± 1.5	0.0885	±	0.0142
34.6 ± 1.5	0.173	±	0.018
35.7 ± 1.4	0.191	±	0.014
39.2 ± 1.3	0.365	±	0.048
40.9 ± 1.4	0.522	±	0.043
42.5 ± 1.2	0.577	±	0.061
42.8 ± 1.4	0.541	±	0.089
46.6 ± 1.3	0.916	±	0.100
52.0 ± 1.3	1.52	±	0.09
56.9 ± 1.2	2.00	±	0.17
61.6 ± 1.1	2.54	±	0.15
66.1 ± 1.0	2.97	±	0.22
69.3 ± 1.0	3.23	±	0.22

$^{209}\text{Bi}(\text{p,f})^{95}\text{Nb}$		Ind	
E [MeV]		$\sigma$ [mb]	
69.3 ± 1.0	0.158	±	0.145

$^{209}\text{Bi}(\text{p,f})^{99}\text{Mo}$		Cum	
E [MeV]		$\sigma$ [mb]	
28.0 ± 1.6	0.0323	±	0.0072
32.1 ± 1.5	0.575	±	0.287
35.7 ± 1.4	1.44	±	0.20
39.2 ± 1.3	1.81	±	0.37
42.5 ± 1.2	1.38	±	0.18

A.3. WIRKUNGSQUERSCHNITTE AUS BISMUT

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{f})^{103}\text{Ru}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$19.6 \pm 2.1$	0.00857	$\pm$	0.00600
$28.0 \pm 1.6$	0.0210	$\pm$	0.0206
$32.1 \pm 1.5$	0.105	$\pm$	0.047
$34.6 \pm 1.5$	0.240	$\pm$	0.141
$35.7 \pm 1.4$	0.295	$\pm$	0.058
$39.2 \pm 1.3$	0.542	$\pm$	0.057
$40.9 \pm 1.4$	0.719	$\pm$	0.089
$42.5 \pm 1.2$	0.860	$\pm$	0.303
$46.6 \pm 1.3$	1.18	$\pm$	0.16
$52.0 \pm 1.3$	1.76	$\pm$	0.16
$56.9 \pm 1.2$	2.71	$\pm$	0.55
$61.6 \pm 1.1$	2.95	$\pm$	0.28
$66.1 \pm 1.0$	3.84	$\pm$	0.51
$69.3 \pm 1.0$	4.06	$\pm$	0.44

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{f})^{106}\text{Ru}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$34.6 \pm 1.5$	0.228	$\pm$	0.211
$39.2 \pm 1.3$	0.605	$\pm$	0.091
$40.9 \pm 1.4$	0.656	$\pm$	0.260
$42.5 \pm 1.2$	0.644	$\pm$	0.292
$46.6 \pm 1.3$	1.61	$\pm$	0.64
$52.0 \pm 1.3$	1.90	$\pm$	0.19
$56.9 \pm 1.2$	2.23	$\pm$	0.19
$61.6 \pm 1.1$	2.76	$\pm$	0.17
$66.1 \pm 1.0$	3.28	$\pm$	0.23
$69.3 \pm 1.0$	3.48	$\pm$	0.35

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{f})^{110\text{m}}\text{Ag}$		Ind	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$56.9 \pm 1.2$	0.0186	$\pm$	0.0146
$61.6 \pm 1.1$	0.0231	$\pm$	0.0017
$66.1 \pm 1.0$	0.0464	$\pm$	0.0039
$69.3 \pm 1.0$	0.0612	$\pm$	0.0039

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{f})^{124}\text{Sb}$		Ind	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$39.2 \pm 1.3$	0.0214	$\pm$	0.0036
$40.9 \pm 1.4$	0.0295	$\pm$	0.0018
$42.5 \pm 1.2$	0.0343	$\pm$	0.0102
$46.6 \pm 1.3$	0.0738	$\pm$	0.0043
$52.0 \pm 1.3$	0.149	$\pm$	0.011
$56.9 \pm 1.2$	0.211	$\pm$	0.015
$61.6 \pm 1.1$	0.292	$\pm$	0.024
$66.1 \pm 1.0$	0.317	$\pm$	0.019
$69.3 \pm 1.0$	0.357	$\pm$	0.026

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{f})^{125}\text{Sb}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$40.9 \pm 1.4$	0.110	$\pm$	0.082
$42.5 \pm 1.2$	0.175	$\pm$	0.122
$46.6 \pm 1.3$	0.215	$\pm$	0.130
$52.0 \pm 1.3$	0.153	$\pm$	0.021
$56.9 \pm 1.2$	0.302	$\pm$	0.062
$61.6 \pm 1.1$	0.195	$\pm$	0.047
$66.1 \pm 1.0$	0.253	$\pm$	0.049
$69.3 \pm 1.0$	0.292	$\pm$	0.035

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{f})^{123\text{m}}\text{Te}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$69.3 \pm 1.0$	0.0353	$\pm$	0.0036

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{f})^{134}\text{Cs}$		Ind	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$52.0 \pm 1.3$	0.0405	$\pm$	0.0237
$61.6 \pm 1.1$	0.0449	$\pm$	0.0210
$66.1 \pm 1.0$	0.0613	$\pm$	0.0110
$69.3 \pm 1.0$	0.0455	$\pm$	0.0328

$^{209}\text{Bi}(\text{p},3\text{p}5\text{n})^{202}\text{Tl}$		Cum	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$52.0 \pm 1.3$	0.423	$\pm$	0.118
$56.9 \pm 1.2$	0.772	$\pm$	0.076
$61.6 \pm 1.1$	0.972	$\pm$	0.058
$66.1 \pm 1.0$	1.44	$\pm$	0.10
$69.3 \pm 1.0$	1.46	$\pm$	0.17

A. WIRKUNGSQUERSCHNITTE AUS BLEI UND BISMUT

$^{209}\text{Bi}(\text{p},2\text{p}5\text{n})^{203}\text{Pb}$		Cum
E [MeV]	$\sigma$ [mb]	
14.8 ± 2.2	0.000934 ±	0.000699
19.5 ± 2.0	0.00499 ±	0.00338
19.6 ± 2.1	0.00698 ±	0.00053
21.9 ± 1.9	0.0541 ±	0.0066
23.6 ± 1.8	0.101 ±	0.007
24.3 ± 2.2	0.122 ±	0.007
28.0 ± 1.6	0.218 ±	0.036
32.1 ± 1.5	0.176 ±	0.147
35.7 ± 1.4	0.357 ±	0.084
39.2 ± 1.3	1.88 ±	0.14
42.5 ± 1.2	4.60 ±	0.30

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{p}3\text{n})^{206}\text{Bi}$		Ind
E [MeV]	$\sigma$ [mb]	
23.6 ± 1.8	0.154 ±	0.022
24.3 ± 2.2	0.249 ±	0.052
28.0 ± 1.6	1.43 ±	0.16
28.3 ± 1.7	2.21 ±	0.39
32.1 ± 1.5	3.04 ±	0.88
35.7 ± 1.4	7.25 ±	1.24
39.2 ± 1.3	25.9 ±	4.5
42.5 ± 1.2	56.6 ±	11.1
46.6 ± 1.3	73.5 ±	41.9
56.9 ± 1.2	47.8 ±	6.9
61.6 ± 1.1	48.3 ±	13.7
66.1 ± 1.0	62.9 ±	7.1
69.3 ± 1.0	80.0 ±	15.9

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{p}4\text{n})^{205}\text{Bi}$		Cum
E [MeV]	$\sigma$ [mb]	
24.3 ± 2.2	0.0133 ±	0.0035
28.0 ± 1.6	0.0777 ±	0.0652
28.6 ± 2.0	0.0362 ±	0.0123
32.1 ± 1.5	0.477 ±	0.343
32.5 ± 1.8	0.215 ±	0.182
34.6 ± 1.5	1.17 ±	0.18
35.7 ± 1.4	0.887 ±	0.265
36.2 ± 1.7	2.09 ±	0.37
39.2 ± 1.3	56.7 ±	4.6
39.6 ± 1.6	84.8 ±	4.3
40.9 ± 1.4	222. ±	17.
42.5 ± 1.2	373. ±	32.
42.8 ± 1.4	391. ±	20.
46.6 ± 1.3	859. ±	57.
52.0 ± 1.3	829. ±	54.
56.9 ± 1.2	498. ±	39.
61.6 ± 1.1	376. ±	25.
66.1 ± 1.0	319. ±	25.
69.3 ± 1.0	292. ±	22.

$^{209}\text{Bi}(\text{p},\text{p}2\text{n})^{207}\text{Bi}$		Cum
E [MeV]	$\sigma$ [mb]	
14.7 ± 2.3	2.61 ±	0.20
14.8 ± 2.2	4.05 ±	0.21
19.5 ± 2.0	18.4 ±	1.3
19.6 ± 2.1	35.7 ±	3.2
21.9 ± 1.9	197. ±	26.
23.6 ± 1.8	570. ±	35.
24.3 ± 2.2	681. ±	35.
28.0 ± 1.6	1190. ±	132.
28.3 ± 1.7	1320. ±	79.
28.6 ± 2.0	1140. ±	59.
32.1 ± 1.5	1060. ±	68.
32.5 ± 1.8	895. ±	47.
34.6 ± 1.5	681. ±	73.
35.7 ± 1.4	545. ±	35.
36.2 ± 1.7	527. ±	29.
39.2 ± 1.3	382. ±	23.
39.6 ± 1.6	369. ±	20.
40.9 ± 1.4	370. ±	26.
42.5 ± 1.2	325. ±	24.
42.8 ± 1.4	324. ±	19.
46.6 ± 1.3	309. ±	27.
52.0 ± 1.3	294. ±	21.
56.9 ± 1.2	275. ±	17.
61.6 ± 1.1	260. ±	19.
66.1 ± 1.0	240. ±	15.
69.3 ± 1.0	230. ±	14.

---

A.3. WIRKUNGSQUERSCHNITTE AUS BISMUT

---

$^{209}\text{Bi}(p,4n)^{206}\text{Po}$			Ind
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$21.9 \pm 1.9$	0.169	$\pm$	0.013
$23.6 \pm 1.8$	0.324	$\pm$	0.030
$24.3 \pm 2.2$	1.83	$\pm$	0.13
$28.0 \pm 1.6$	8.85	$\pm$	0.61
$28.3 \pm 1.7$	22.3	$\pm$	1.5
$28.6 \pm 2.0$	37.3	$\pm$	2.4
$32.1 \pm 1.5$	381.	$\pm$	27.
$32.5 \pm 1.8$	456.	$\pm$	26.
$34.6 \pm 1.5$	926.	$\pm$	58.
$35.7 \pm 1.4$	929.	$\pm$	63.
$36.2 \pm 1.7$	935.	$\pm$	53.
$39.2 \pm 1.3$	1090.	$\pm$	75.
$39.6 \pm 1.6$	1060.	$\pm$	60.
$40.9 \pm 1.4$	1100.	$\pm$	74.
$42.5 \pm 1.2$	797.	$\pm$	54.
$42.8 \pm 1.4$	801.	$\pm$	42.
$46.6 \pm 1.3$	436.	$\pm$	30.
$52.0 \pm 1.3$	243.	$\pm$	17.
$56.9 \pm 1.2$	187.	$\pm$	13.
$61.6 \pm 1.1$	161.	$\pm$	11.
$66.1 \pm 1.0$	141.	$\pm$	9.
$69.3 \pm 1.0$	125.	$\pm$	8.

$^{209}\text{Bi}(p,3n)^{207}\text{Po}$			Ind
E [MeV]	$\sigma$ [mb]		
$19.5 \pm 2.0$	11.3	$\pm$	0.7
$19.6 \pm 2.1$	30.6	$\pm$	2.3
$23.6 \pm 1.8$	536.	$\pm$	38.
$24.3 \pm 2.2$	642.	$\pm$	45.
$28.0 \pm 1.6$	1150.	$\pm$	83.
$32.1 \pm 1.5$	915.	$\pm$	63.
$35.7 \pm 1.4$	394.	$\pm$	36.
$39.2 \pm 1.3$	226.	$\pm$	19.
$42.5 \pm 1.2$	168.	$\pm$	15.



## B. Ausgewertete Proben

In den folgenden beiden Tabellen findet sich eine Übersicht aller ausgewerteten schweren Targets. Aufgeführt ist die Probenbezeichnung (Zusammengesetzt aus dem Elementsymbol, einer Experimentbezeichnung und einer laufenden Nummer), die Protonenenergie der Probe, die Fluenz der Protonen, die Massenbelegung und die daraus berechnete Dicke der Probe und schließlich die Anzahl von einzeln berechneten Wirkungsquerschnitten aus dieser Probe.

Auf die Angabe von Unsicherheiten wurde verzichtet. Sie finden sich für die Energien in Anhang A, und für die Flussdichten in den jeweiligen Kapiteln deren Diskussion.

### B.1. Ausgewertete Bismutproben

Probe	Energie [MeV]	Fluenz [ $10^{15} \text{ cm}^{-2}$ ]	Massenbelegung [ $\text{mg cm}^{-2}$ ]	Dicke [ $\mu\text{m}$ ]	Anzahl Wirkungs- querschnitte
BIZG081	14.7	1.25	250.12	256.6	5
BIZ6081	14.8	5.36	242.27	248.6	3
BIZG071	19.5	1.25	255.10	261.7	20
BIZ6071	19.6	5.36	282.51	289.8	27
BIZB191	21.9	2.92	207.90	212.1	15
BIZG061	23.6	1.25	258.61	265.3	101
BIZ6061	24.3	5.36	342.57	351.5	171
BIZG051	28.0	1.25	261.07	267.8	164
BIZB171	28.3	2.92	214.94	219.3	50
BIZ6051	28.6	5.36	348.58	357.6	39

Fortsetzung auf der nächsten Seite ...

## B. AUSGEWERTETE PROBEN

---

... Fortsetzung der Tabelle der ausgewerteten Bismutproben

Probe	Energie [MeV]	Fluenz [ $10^{15} \text{ cm}^{-2}$ ]	Massenbelegung [ $\text{mg cm}^{-2}$ ]	Dicke [ $\mu\text{m}$ ]	Anzahl Wirkungs- querschnitte
BIZG041	32.1	1.25	261.92	268.7	147
BIZ6041	32.5	5.36	342.18	351.1	17
BIZB151	34.6	2.92	221.19	225.7	67
BIZG031	35.7	1.25	264.51	271.4	144
BIZ6031	36.2	5.36	362.91	372.3	23
BIZG021	39.2	1.25	273.43	280.5	210
BIZ6021	39.6	5.36	355.34	364.6	18
BIZB131	40.9	2.92	225.36	230.0	105
BIZG011	42.5	1.25	276.62	283.8	353
BIZ6011	42.8	5.36	354.77	364.0	19
BIZB111	46.6	2.92	231.44	236.2	96
BIZB091	52.0	2.92	235.05	239.8	109
BIZB071	56.9	2.92	238.08	242.9	117
BIZB051	61.6	2.92	242.58	247.5	115
BIZB031	66.1	2.92	243.23	248.2	130
BIZB011	69.3	2.92	285.26	291.1	145

## B.2. Ausgewertete Bleiproben

Probe	Energie [MeV]	Fluenz [ $10^{15} \text{ cm}^{-2}$ ]	Massenbelegung [ $\text{mg cm}^{-2}$ ]	Dicke [ $\mu\text{m}$ ]	Anzahl Wirkungs- querschnitte
PBZF102	9.0	4.41	56.34	49.6	222
PBZF092	13.8	4.41	56.60	49.9	310
PBZ5113	14.1	4.89	43.18	38.0	103
PBZ5112	14.8	4.89	68.27	60.1	66
PBZ5103	18.4	4.89	45.33	39.9	79
PBZF082	18.4	4.41	60.59	53.4	314
PBZ5102	19.0	4.89	66.60	58.7	39
PBZ5093	22.1	4.89	45.42	40.0	36
PBZF072	22.3	4.41	60.71	53.5	352
PBZ5092	22.7	4.89	70.35	62.0	89
PBZ5083	25.5	4.89	55.31	48.7	51

Fortsetzung auf der nächsten Seite ...

... Fortsetzung der Tabelle der ausgewerteten Bleiprobe

Probe	Energie [MeV]	Fluenz [ $10^{15} \text{ cm}^{-2}$ ]	Massenbelegung [ $\text{mg cm}^{-2}$ ]	Dicke [ $\mu\text{m}$ ]	Anzahl Wirkungs- querschnitte
PBZF062	25.7	4.41	60.79	53.6	349
PBZ5082	25.9	4.89	48.85	43.0	43
PBZ5073	28.4	4.89	55.16	48.6	86
PBZ5072	28.9	4.89	48.96	43.1	97
PBZF052	29.7	4.41	61.56	54.2	352
PBZ5063	31.2	4.89	56.21	49.5	87
PBZ5062	31.6	4.89	55.59	49.0	99
PBZF042	33.3	4.41	61.94	54.6	376
PBZ5053	33.8	4.89	53.87	47.5	99
PBZ5052	34.2	4.89	56.74	50.0	109
PBZA143	35.5	2.14	58.73	51.8	248
PBZ5043	36.2	4.89	54.88	48.4	107
PBZ5042	36.6	4.89	48.06	42.3	99
PBZF032	36.7	4.41	62.70	55.2	389
PBZ5033	38.5	4.89	47.08	41.5	97
PBZ5032	38.8	4.89	46.21	40.7	101
PBZA133	39.2	2.14	58.59	51.7	225
PBZF022	39.8	4.41	63.49	55.9	402
PBZ5023	40.7	4.89	56.61	49.9	102
PBZ5022	41.1	4.89	69.02	60.8	103
PBZA122	42.2	2.14	58.64	51.7	243
PBZF012	42.8	4.41	65.20	57.4	380
PBZ5013	43.0	4.89	70.33	62.0	104
PBZ5012	43.5	4.89	67.50	59.5	67
PBZA113	45.0	2.14	59.04	52.1	217
PBZA102	47.7	2.14	58.79	51.8	205
PBZA093	50.4	2.14	59.58	52.5	216
PBZA083	53.2	2.14	59.94	52.9	170
PBZA072	55.7	2.14	60.09	53.0	231
PBZA062	58.1	2.14	62.80	55.4	202
PBZA052	60.0	2.14	63.15	55.7	256
PBZA043	62.2	2.14	62.64	55.2	270
PBZA032	64.4	2.14	62.82	55.4	243
PBZA023	66.6	2.14	63.77	56.2	237
PBZA012	69.0	2.14	64.14	56.6	269



## C. Übersicht der bestimmten Flussdichten

In der folgenden Tabelle werden die Flussdichten für alle Bestrahlungen aufgelistet, die im Rahmen dieser Arbeit bestimmt wurden.

Bezeichnung des Bestrahlungsexperimentes	Dauer der Bestrahlung [hh:mm]	[s]	Protonenflussdichte [ $10^{10} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ ]
Zuer01	06:39	23940	18.4
Zuer02	06:03	21780	18.3
Zuer03	06:01	21660	17.8
Zuer04	07:00	25200	18.5
Zuer05	11:48	42480	11.5
Zuer06	11:42	42120	12.7
Zuer07	07:49	28140	28.7
Zuer08	09:18	33480	8.28
Zuer09	10:48	38880	8.75
Zuer0A	07:15	26100	8.18
Zuer0B	07:56	28560	10.2
Zuer0C	07:51	28260	10.5
Zuer0D	15:33	55980	14.4 <sup>1</sup>
Zuer0E	19:05	68700	12.5 <sup>1</sup>
Zuer0F	07:24	26640	16.6
Zuer0G	02:06	7560	16.6
Zuer0I	09:56	35760	— <sup>2</sup>
Zuer0M	18:32	66720	20.1
Zuer0U	09:25	33900	— <sup>3</sup>
Zuer0W	08:42	31320	— <sup>2</sup>

<sup>1</sup>Vorläufig, da Auswertungen noch nicht abgeschlossen

<sup>2</sup>Messungen noch nicht abgeschlossen

<sup>3</sup>Auswertung erfolgt am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie, Universität Hannover

Jede der angegebenen Flussdichten wird, wie in Kapitel 5.2 diskutiert, mit einer Unsicherheit von 5% und ohne Abnahme innerhalb des Stacks angenommen. Jede der bestimmten Flussdichten ist der Mittelwert der Ergebnisse aus mehreren, zumeist vorne im Stack positionierten Aluminium- und Kupferfolien, in denen jeweils die Aktivitäten des  $^{22}\text{Na}$  und  $^{65}\text{Zn}$  ermittelt wurden.

Die verwendeten Monitorwirkungsquerschnitte finden sich im Anhang D.

## D. Verwendete Monitorwirkungsquerschnitte

In den zwei folgenden Tabellen sind die verwendeten Wirkungsquerschnitte für die benutzten Monitorreaktionen aufgeführt. In beiden zitierten Arbeiten wurden diese in Evaluationen vorhandener experimenteller Werte gewonnen. Als Unsicherheit der Wirkungsquerschnitte wird 5% angenommen.

### D.1. Monitorwirkungsquerschnitte der Reaktion $^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$

$^{27}\text{Al}(p,3p3n)^{22}\text{Na}$				nach [TTG <sup>+</sup> 01]	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]	E [MeV]	$\sigma$ [mb]	E [MeV]	$\sigma$ [mb]
30.0	1.90	44.0	44.0	60.0	26.6
32.0	7.00	45.0	43.5	62.0	25.5
34.0	15.0	46.0	42.9	64.0	24.4
36.0	24.0	48.0	40.5	66.0	23.6
38.0	32.5	50.0	37.6	68.0	22.8
40.0	39.6	52.0	35.0	70.0	22.2
41.0	41.5	54.0	32.5	72.0	21.6
42.0	42.9	56.0	30.3	74.0	21.3
43.0	43.6	58.0	28.1	76.0	21.0

## D.2. Monitorwirkungsquerschnitte der Reaktion



${}^{nat}\text{Cu}(\text{p},\text{xn}){}^{65}\text{Zn}$				nach [Bus94]	
E [MeV]	$\sigma$ [mb]	E [MeV]	$\sigma$ [mb]	E [MeV]	$\sigma$ [mb]
3.9	31.4	12.8	170.	22.4	14.2
4.0	33.0	14.0	122.	23.6	12.6
4.3	45.0	14.5	102.	25.0	11.2
4.6	58.3	14.7	94.3	26.4	10.3
4.9	74.3	14.9	88.2	29.2	8.85
5.2	87.0	15.1	81.4	30.2	8.49
5.6	102.	15.2	79.2	32.5	7.81
6.3	128.	15.4	74.9	34.7	7.13
7.2	153.	16.1	60.5	36.7	6.70
8.0	176.	16.3	57.0	38.7	6.20
8.9	200.	16.8	49.2	42.4	5.56
9.4	212.	17.7	38.1	44.6	5.23
9.9	221.	18.3	32.0	54.3	4.50
10.5	231.	19.0	26.7	56.5	4.34
10.6	232.	19.7	22.4	59.5	4.11
11.0	232.	20.0	21.4	62.3	3.90
11.3	227.	20.7	18.6	66.2	3.58
11.4	224.	21.2	16.7	70.0	3.23
11.6	216.	21.4	16.2	74.0	2.95

# Literaturverzeichnis

- [AEI<sup>+</sup>96] ALEXANDROV, Y. V.; EISMONT, V. P.; IVANOV, R. V.; MIKHAILOVA, M. A.; PRIKHODTSEVA, V. P.; SAULSKY, A. V.; VASILJIEV, S. K.: Cross Sections for the Production of Radionuclides in Lead Target Irradiated with 660 MeV Protons. In: CONDÉ, H. (Hrsg.): *Proc. 2nd Int. Conf. On Accelerator-Driven Transmutation Technologies and Applications (ADTT'96)*, Kalmar. Uppsala University: Uppsala, Sweden, 3-7 June 1996, S. 576–586
- [Aic91] AICHELIN, J.: Quantum Molecular Dynamics: A Dynamical Microscopic N Body Approach to Investigate Fragment Formation and the Nuclear Equation of State in Heavy Ion Collisions. In: *Phys. Reports* 202 (1991), S. 233–361
- [AZ77] ANDERSON, H. H.; ZIEGLER, J. F.: Hydrogen Stopping Powers and Range in All Elements. In: *The Stopping and Ranges of Ions in Matter* Bd. 3. Pergamon Press, 1977. – ISBN 0–08–021605–6 4.1.2
- [BAL<sup>+</sup>92] BOWMAN, C. D.; ARTHUR, E. D.; LISOWSKI, P. W.; LAWRENCE, G. P.; JENSEN, R. J.; ANDERSON, J. L.; BLIND, B.; CAPPIELLO, M.; DAVIDSON, J. W.; ENGLAND, T. R.; ENGEL, L. N.; HAIGHT, R. C.; HUGHES III, H. G.; IRELAND, J. R.; KRAKOWSKI, R. A.; LABAUVE, R. J.; LETELLIER, B. C.; PERRY, R. T.; RUSSELL, G. J.; STAUDHAMMER, K. P.; VERSAMIS, G.; WILSON, W. B.: Nuclear energy generation and waste transmutation using an accelerator-driven intense thermal neutron source. In: *Nucl. Instr. Meth.* A320 (1992), S. 336–367
- [Bau98] BAUER, G. S.: Operation and development of the new spallation neutron source SINQ at the Paul Scherrer Institute. In: *Nucl. Instr. Meth.* B139 (1998), S. 65–71
- [BFZ<sup>+</sup>81] BERG, V.; FRANSSON, K.; ZHAOMIN, Hu; OMS, J.; THE ISOCELLE COLLABORATION: Vie Moyenne du Premier Niveau (3/2)<sup>+</sup> dans <sup>207,205,203,201</sup>Bi. In: *Ann. Rept.* Univ. Paris, Inst. Phys. Nucl., 1981, S. N47
- [BGG<sup>+</sup>71] BIRATTARI, C.; GADIOLI, E.; GRASSI STRINI, A. M.; STRINI, G.; TAGLIAFERRI, G.; ZETTA, L.: (p,xn) Reactions Induced in Tm-169, Ta-181 and Bi-209 with 20 to 45 MeV Protons. In: *Nucl. Phys.* A166 (1971), S. 605–612

- [BH99] BERGER, M. J.; HUBBELL, J. H.: *XCOM: Photon Cross Sections on a Personal Computer*. Version 3.1. Center for Radiation Research (National Bureau of Standards): Gaithersburg, MD 20899, 1999 <http://physics.nist.gov/XCOM> 4.2.5, 4.4.2
- [BKF99] BLAAUW, M.; KEYSER, R. M.; FAZEKAS, B.: Comparison of alternative methods for multiplet deconvolution in the analysis of gamma-ray spectra. In: *Nucl. Instr. Meth.* A432 (1999), S. 77–89 5.5
- [BL66] BIMBOT, R.; LEFORT, M.: Réactions Nucléaires (p, $\alpha$ xn) et (p,p $\alpha$ xn) sur le Bismuth aux Moyennes Énergies, Présomptions en Faveur de la Projection de Sous-Structures Alpha. In: *J. Phys.* 27 (1966), S. 25 5.4.5, 6.4.3
- [BL67] LE BEYEC, Y.; LEFORT, M.: Réaction Entre Protons de 30 à 155 MeV et Noyaux Lourds Complexes. In: *Nucl. Phys.* A99 (1967), S. 131 5.4.2, 5.4.2, 5.4.3, 6.4.2
- [Bla71] BLANN, M.: Hybrid Model for Pre-Equilibrium Decay in Nuclear Reactions. In: *Phys. Rev. Lett.* 27 (1971), S. 337 6.1
- [Bla72] BLANN, M.: Importance of the Nuclear Density Distribution on Pre-Equilibrium Decay. In: *Phys. Rev. Lett.* 28 (1972), S. 757 6.1
- [BLPL61] BRUNNER, J. H.; LOMBARD, R.; PERDRISAT, C. F.; LEISI, H. J.: Spectres de Positrons dans les Desintegrations  $^{205}\text{Bi}$  /  $^{205}\text{Pb}$  et  $^{206}\text{Bi}$  /  $^{206}\text{Pb}$ . In: *Helv. Phys. Acta* 34 (1961), S. 472 5.1.2
- [Bod93] BODEMANN, R.: *Zur Wechselwirkung der solaren kosmischen Strahlung mit extraterrestrischer Materie – Messung von Wirkungsquerschnitten und Modellrechnungen*, Universität Hannover, Dissertation, 1993 4.1.2
- [BOE<sup>+</sup>97] BLAAUW, M.; OSORIO FERNANDEZ, V.; VAN ESPEN, P.; BERNASCONI, G.; CAPOTE NOY, R.; MANH DUNG, H.; MOLLA, N. I.: The 1995 IAEA inter-comparison of  $\gamma$ -ray spectrum analysis software. In: *Nucl. Instr. Meth.* A387 (1997), S. 416–432 4
- [BOF<sup>+</sup>86] BERG, V.; OMS, J.; FRANSSON, K.; HU, Z.; THE ISOCELE COLLABORATION: Half-Life and Electromagnetic Deexcitation Rate Measurements for (1/2)<sup>+</sup> and (3/2)<sup>+</sup> States in Odd-Proton Nuclei around Z = 82. In: *Nucl. Phys.* A453 (1986), S. 93 5.1.3
- [Boh36] BOHR, N.: Neutron capture and nuclear constitution. In: *Nature* 137 (1936), S. 344 3.2
- [BS56] BELL, R. E.; SKARSGARD, H. M.: Cross Sections of (p,xn) Reactions in the Isotopes of Lead, Bismuth. In: *Can. J. Phys.* 34 (1956), S. 745 5.4.2

- [Bus94] BUSEMANN, H.: *Experimentelle Bestimmung und theoretische Interpretation von Dünntarget-Wirkungsquerschnitten Protonen-induzierter Reaktionen*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1994 4.3.1, 4.8, 4.3.1, 5.2.2, 5.2.2, 5.2.6, D.2
- [BV83] BLANN, M.; VONACH, H. K.: Global Test of Modified Precompound Decay Models. In: *Phys. Rev. C*28 (1983), S. 1475 6.1
- [CIF+96] CHIBA, S.; IWAMOTO, O.; FUKAHORI, T.; NIITA, A.; MURUYAMA, T.; MURUYAMA, T.; IWAMOTO, A.: Analysis of proton-induced fragment production cross sections by the Quantum Molecular Dynamics plus Statistical Decay Model. In: *Phys. Rev. C*54 (1996), S. 285 <http://arXiv.org/abs/nuc1-th/9602019> 6
- [CKR+93] CARMINATI, F.; KLAPISCH, R.; REVOL, J. P.; ROCHE, C.; RUBIO, J. K.; RUBBIA, C.: An Energy Amplifier for Cleaner and Inexhaustible Nuclear Energy Production Driven by a Particle Beam Accelerator. In: *Report CERN/AT/93-47(ET)* (1993) 1
- [Col99] COLDWELL, R. L.: Robust Fitting of Spectra to Splines with Variable Knots. In: DUGGAN, J. L. (Hrsg.); MORGAN, I. L. (Hrsg.): *Applications of Accelerators in Research and Industry (Denton, Texas)*. AIP Press: New York, 4–7 November 1999, S. CP475  
<http://www.phys.ufl.edu/~coldwell/denton/Denton3.html> 5.5
- [CRDO98] CHADWICK, M.; REFFO, G.; DUNFORD, C. L.; OBLOZINSKY, P.: Nuclear Models to 200 MeV for High-Energy Data Evaluations. In: *NEA/WPEC-186*. International Evaluation Co-operation NEA/OECD, 1998  
<http://www.nea.fr/html/science/docs/1998/nsc-wpec-doc98-186.pdf> 1, 6
- [DBF+97] DUIJVESTIJN, M. C.; BEIJERS, J. P. M.; FERRARI, A.; GASTAL, M.; VAN KLINKEN, J.; KONING, A. J.; OSTENDORF, R. W.: Fission in Proton Induced Reactions on Pb: Cross Sections and Fragment Yields. In: REFFO, G. (Hrsg.); VENTURA, A. (Hrsg.); GRANDI, C. (Hrsg.): *Proc. Int. Conf. Nuclear Data for Science and Technology, Trieste*. Italian Physical Society Conf. Proc. 59: Bologna, 19-24 May 1997, S. 455 5.3.6
- [DH88] DEBERTIN, K.; HELMER, R. G.: *Gamma- and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detektors*. North-Holland, Amsterdam, 1988 4.2.2, 4.2.2
- [DK98] DUNFORD, C. L.; KINSEY, R. R.: NuDat System for Access to Nuclear Data. In: *IAEA-NDS (BNL-NCS-65687)*, IAEA 205 (1998)  
[http://iaeand.iaea.or.at/ndspub/pc\\_prog/](http://iaeand.iaea.or.at/ndspub/pc_prog/) 5.1.2, 6.3

- [DKK<sup>+</sup>90] DEPTUŁA, C.; KALKIN, V. A.; KIM SEN, H.; KNOTEK, O.; KONOV, V. A.; MIKECZ, P.; POPINENKOVA, L. M.; RURARZ, E.; ZAITSEVA, N. G.: Excitation Functions and Yields For Medically Generator Sr-82-Rb-82, Xe-123-I-123 and Bi-201-Pb-201-Tl-201 Obtained with 100 MeV Protons. In: *Nukleonika* 35 (1990), S. 3 5.3.2, 5.3.2, 5.3.2, 6.5
- [DKLS98] DITYUK, A. I.; KONOBEYEV, A. Y.; LUNEV, V. P.; SHUBIN, Y. N.: New Advanced Version of Computer Code ALICE-IPPE. In: *Report IAEA INDC(CCP)-410* (1998) <http://iaeand.iaea.or.at/reports/indc-ccp-410.pdf> 6
- [Dra87] DRAGOVITSCH, P.: *Über die Produktion kosmogener Radionuklide in Meteoroiden – Simulationsexperimente und Modellrechnungen*, Universität zu Köln, Dissertation, 1987 4.2.1
- [DS90] DEBERTIN, K.; SCHÖTZING, U.: *PTB Bericht*. Bd. PTB-Ra-24 : Bedeutung von Summationskorrekturen bei der Gammastrahlen-Spektrometrie mit Germaniumdetektoren. Physikalisch Technische Bundesanstalt, 1990 4.4.2
- [DSS96] DEMENTYEV, A. V.; SOBOLEVSKY, N. M.; STAVISSKY, Y. Y.: Neutron yield from extended lead target under incident protons of 0.1 to 100 GeV. In: *Nucl. Instr. Meth.* A374 (1996), S. 70–72 1
- [ESS] European Spallation Source (ESS). <http://www.ess-europe.de/> 1
- [Fan63] FANO, U.: Penetration of Protons, Alpha Particles and Mesons. In: *Ann. Rev. Nucl. Sci.* 13 (1963), S. 1 4.1.2
- [FGG<sup>+</sup>79] FERRERO, A.; GADIOLI, E.; GADIOLI ERBA, E.; IORI, I.; MOLHO, N.; ZETTA, L.:  $\alpha$ -Emission in Proton Induced Reactions. In: *Z. Phys.* A293 (1979), S. 123 6.1
- [FH58] FRITSCH, A. R.; HOLLANDER, J. M.: Radiations from Decay of Bismuth-203, Bismuth-204, Lead-204m and Bismuth-205. In: *J. Inorg. Nucl. Chem.* 6 (1958), S. 165 5.1.2
- [FÖK<sup>+</sup>97] FAZEKAS, B.; ÖSTÖR, J.; KIS, Z.; MOLNÁR, G.; SIMONITS, A.: The new features of the program HYPERMET-PC. In: MOLNÁR, G. (Hrsg.); BELGYA, T. (Hrsg.); RÉVAY, Zs. (Hrsg.): *Proc. 9th Int. Symp. Capture Gamma-Ray Spectroscopy and Related Topics*, Springer, Budapest, 1997, S. 774–778 4.2.2
- [FP91] FUKAHORI, T.; PEARLSTEIN, S.: Evaluation at the Medium Energy Region for Pb-208 and Bi-209. In: *Proc. of the Advisory Group Meeting on Intermediate Energy Nuclear Data for Applications*, IAEA Vienna, INDC(NDS)-245, 1991, S. 93 5.3.6
- [FS96] FIRESTONE, R. B.; SHIRLEY, V. S.: *Table of Isotopes*. 8<sup>th</sup> Edition. Wiley: New York, 1996 4.1.2, 5.1.2

- [FSLQ97] FASSBENDER, M.; SHUBIN, Y. N.; LUNEV, V. P.; QAIM, S. M.: Experimental Studies and Nuclear Model Calculations on the Formation of Radioactive Products in Interactions of Medium Energy Protons with Copper, Zinc and Brass: Estimation of Collimator Activation in Proton Therapy Facilities. In: *Appl. Radiat. Isot.* 48 (1997), Nr. 9, S. 1221–1230 6
- [FSQ99] FASSBENDER, M.; SHUBIN, Y. N.; QAIM, S. M.: Formation of Activation Products in Interactions of Medium Energy Protons with Na, Si, P, S, Cl, Ca and Fe. In: *Radiochimica Acta* 84 (1999), S. 59–67 6
- [GA85] GRAY, P. W.; AHMAD, A.: Linear Classes of Ge(Li) Detector Efficiency Functions. In: *Nucl. Instr. Meth.* A237 (1985), S. 577 4.2.2
- [Gad88] GADIOLI, E.: Emission of complex particles in precompound reactions. In: *Report of Istituto Nazionale di Fisica Nucleare, Milano INFN/BE-88-2* (1988) 6.1
- [Glo93] GLORIS, M.: AutoGamW – Automatisierte Unterstützung bei der Spektrenanalyse mit GammaW. Internes ZSR Dokument. 1993 4
- [Glo98] GLORIS, M.: *Protonen-induzierte Restkernproduktion in schweren Elementen bei mittleren Energien*, Universität Hannover, Dissertation, 1998 4, 4.4.2, 5.4.3, 5.4.5, 6, 6.4.4
- [GMS<sup>+</sup>01] GLORIS, M.; MICHEL, R.; SUDBROCK, F.; HERPERS, U.; MALMBORG, P.; HOLMQVIST, B.: Proton-Induced Production of Residual Radionuclides in Lead at Intermediate Energies. In: PENDL, H. S. (Hrsg.): *Special Issue on Accelerator Driven Systems* Nucl. Instr. Meth. A463, 2001, S. 593–633 1, 5.3, 5.3.2, 5.3.2, 5.3.4, 5.3.6, 5.4.6, 5.5, 6.4.3
- [GNL<sup>+</sup>98] GLORIS, M.; NEUMANN, S.; LEYA, I.; MICHEL, R.; SCHNABEL, C.; SUDBROCK, F.; HERPERS, U.; JONSSON, O.; MALMBORG, P.; HOLMQVIST, B.; CONDÉ, H.; KUBIK, P. W.; SUTER, M.; GILABERT, E.; LAVIELLE, B.: Cross Section Measurements for the Production of Residual Nuclei by Medium-Energy Nucleons. In: QAIM, S. M. (Hrsg.): *Progress Report on Nuclear Data Research in the Federal Republic of Germany for the Period April 1, 1997 to March 31, 1998* NEA/NSC/DOC(1998) 7, INDC(Ger.)-044, Jül-3550, 1998, S. 27–34 1
- [Gri66] GRIFFIN, J. J.: Statistical Model of Intermediate Structure. In: *Phys. Rev. Lett.* 17 (1966), S. 478 6.1
- [Her86] HERPERS, U.: Radiation Detection and Measurement. In: ELVING, P. I. (Hrsg.): *Treatise on Analytical Chemistry* Bd. 14. Wiley, 1986, Kapitel 2, Teil I, Section K, S. 123–192 4.2.1

- [HGB<sup>+</sup>83] HUBEL, H.; GUTTORMSEN, M.; BLUME, K. P.; RECHT, J.; VON GRUMBKOW, A.; HARDT, K.; SCHULER, P.; AGARWAL, Y. K.; MAJ, A.: Isomeric Transitions in <sup>203</sup>Bi and <sup>205</sup>Bi. In: *Z. Phys.* A314 (1983), S. 89 5.1.3
- [HGG97] HODGSON, P. E.; GADIOLI, E.; GADIOLI ERBA, E.: *Introductory Nuclear Physics*. Oxford Science Publications, 1997. – ISBN 019851897 3.1
- [HMB68] HARP, G. D.; MILLER, J. M.; BERNE, B. J.: Attainment of Statistical Equilibrium in Excited Nuclei. In: *Phys. Rev.* 165 (1968), S. 1166 6.1
- [HWF<sup>+</sup>83] HERZOG, P.; WALITZKI, H.; FREITAG, K.; HILDEBRAND, H.; SCHLOSSER, K.: Nuclear Orientation and NMR/ON of <sup>205,207</sup>Po. In: *Z. Phys.* A311 (1983), S. 351 5.1.3
- [IH82] IWAMOTO, A.; HARADA, K.: Mechanism of Cluster Emission in Nucleon-Induced Preequilibrium Reactions. In: *Phys. Rev.* C26 (1982), S. 1821 6.1
- [ISS] Spallation Neutron Source at Rutherford Appleton Laboratory (ISIS).  
<http://www.isis.rl.ac.uk/> 1
- [IST75] IGNATYUK, A. V.; SMIRENKIN, G. N.; TISHIN, A. S.: Phenomenological description of the energy dependence of the level density parameter. In: *Sov. J. Nucl. Phys.* 21 (1975), S. 255 6.2, 6.5
- [JS55] JODRA, L. G.; SUGARMAN, N.: High Energy Fission of Bismuth. Proton energy dependence. In: *Phys. Rev.* 99 (1955), S. 1470 5.4.6
- [JWP87] JÄCKEL, B.; WESTMEIER, W.; PATZELT, P.: On the Photopeak Efficiency of Germanium Gamma-Ray Detectors. In: *Nucl. Instr. Meth.* A261 (1987), S. 543 4
- [Kan92] KANISCH, G.: Anforderungen an die Qualitätskontrolle bei Radioaktivitätsmessungen. In: *Messanleitungen für die Überwachung der Radioaktivität in der Umwelt und zur Erfassung radioaktiver Emissionen aus kerntechnischen Anlagen*. Gustav Fischer Verlag Stuttgart: Der Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit, 1992 4.5
- [KDB98] KONING, A. J.; DELAROCHE, J.-P.; BERSILLON, O.: Nuclear data for accelerator driven systems: Nuclear models, experiments and data libraries. In: *Nucl. Instr. Meth.* A414 (1998), S. 49–67 1
- [KFÖ<sup>+</sup>98] KIS, Z.; FAZEKAS, B.; ÖSTÖR, J.; RÉVAY, Zs.; BELGYA, T.; MOLNÁR, G. L.; KOLTAY, L.: Comparison of Efficiency Functions for Ge Gamma-Ray Detectors in a wide Energy Range. In: *Nucl. Instr. Meth.* A418 (1998), S. 374–386  
<http://www.iki.kfki.hu/nuclear/pubs/1999/comparison.pdf> 4.2.2

- [KHG<sup>+</sup>00] KUHNHENN, J.; HERPERS, U.; GLASSER, W.; MICHEL, R.; KUBIK, P. W.; SUTER, M.: Cross Sections for Radionuclide Production Relevant to Accelerator Driven Systems. In: QAIM, S. M. (Hrsg.): *Progress Report on Nuclear Data Research in the Federal Republic of Germany for the Period April 1, 1999 to March 31, 2000* NEA/NSC/DOC(2000) 11, INDC(Ger.)-046, Jül-3780, 2000, S. 26–27 1
- [Kri95] KRINS, A.: *Messung von Aktivierungsquerschnitten Protonen-induzierter Reaktionen an schweren Targetelementen*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1995 4
- [KT51] KARRAKER, D. G.; TEMPLETON, D. H.: Polonium Isotopes Produced with High Energy Particles. In: *Phys. Rev.* 81 (1951), S. 510 5.1.2
- [Lon82] LONNROTH, T.: In-Beam Studies of <sup>203,205</sup>Bi and Shell-Model Features of Odd-A Bismuth Isotopes. In: *Z. Phys.* A307 (1982), S. 175 5.1.3
- [LSCN<sup>+</sup>87] LAGUNAS-SOLAR, M. C.; CARVACHO, O. F.; NAGAARA, L.; MISHRA, A.; PARKS, N. J.: Cyclotron Production of No-Carrier-Added Bi-206 and Bi-205 as Tracers for Biological Studies and for the Development of Alpha-Emitting Radiotherapeutic Agents. In: *Appl. Rad. Isot.* 38 (1987), S. 129–137 (document), 5.3.2, 5.3.2, 5.13, 5.3.2, 5.3.2, 6.4.1, 6.4.1, 6.5
- [MBB<sup>+</sup>97] MICHEL, R.; BODEMANN, R.; BUSEMANN, H.; DAUNKE, R.; GLORIS, M.; LANGE, H. J.; KLUG, B.; KRINS, A.; LEYA, I.; LÜPKE, M.; NEUMANN, S.; REINHARDT, H.; SCHNATZ-BÜTTGEN, M.; HERPERS, U.; SCHIEKEL, Th.; SUDBROCK, F.; HOLMQVIST, B.; CONDÉ, H.; MALMBORG, P.; SUTER, M.; DITTRICH-HANNEN, B.; KUBIK, P. W.; SYNAL, H.-A.; FILGES, D.: Cross sections for the production of residual nuclides by low- and medium-energy protons from the target elements C, N, O, Mg, Al, Si, Ca, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Sr, Y, Zr, Nb, Ba and Au. In: *Nucl. Instr. Meth.* B129 (1997), S. 153 1, 4.3.1
- [Mic99] MICHEL, R.: Long-Lived Radionuclides as Tracers in Terrestrial and Extraterrestrial Matter. In: *Radiochimica Acta* 87 (1999), S. 47–73 1
- [MLB96] MICHEL, R.; LEYA, I.; BORGES, L.: Production of cosmogenic nuclides in meteoroids – Accelerator experiments and model calculations to decipher the cosmic ray record in extraterrestrial matter. In: *Nucl. Instr. Meth.* B113 (1996), S. 434–444 1
- [MN97] MICHEL, R.; NAGEL, P.: International Codes and Model Comparison for Intermediate Energy Activation Yields. In: *NEA/NSC/DOC(97)* 1 (1997) <http://www.nea.fr/html/science/docs/1997/nsc-doc97-1.html> 6
- [Moe96] MOELLER, T. G.: *Maestro for Windows: MCA Emulator for Microsoft Windows, A65-BI, Software User's Manual*. EG&G Ortec: 100 Midland Road, Oak Ridge, TN 37831-0895, USA, 1996 4

- [MS67] MYERS, W. D.; SWIATECKI, W. J.: Anomalies in Nuclear Masses. In: *Ark. Fys.* 36 (1967), S. 343–6.2
- [MS69] MARMIER, P.; SHELDON, E.: *Physics Of Nuclei And Particles Vol. 1*. Academic Press New York, 1969 4.1.2
- [MS00] MASHNIK, S. G.; SIERK, A. J.: CEM2k – Recent Developments in CEM. In: *Proc. of the 4th International Topical Meeting on Nuclear Applications of Accelerator Technology (AccApp00)*. Los Alamos Report LA-UR-00-5437: Washington, DC, USA, 13-15 November 2000  
<http://arXiv.org/abs/nuc1-th/0011064> 5.5
- [MSKN74] MIYANO, K.; SEKIKAWA, M.; KANEKO, T.; NOMOTO, M.: Reactions on Bi-209 Induced by Intermediate Energy Protons and the Effect of Direct Reactions. In: *Nucl. Phys.* A230 (1974), S. 98–5.4.2, 5.4.2
- [MTC<sup>+</sup>99] MEIGO, S.; TAKADA, H.; CHIBA, S.; NAKAMOTO, T.; ISHIBASHI, K.; MATSU-FUJI, N.; MAEHATA, K.; SHIGYO, N.; WATANAME, Y.; NUMAJIRI, M.: Measurements of neutron spectra produced from a thick lead target bombarded with 0.5– and 1.5–GeV protons. In: *Nucl. Instr. Meth.* A431 (1999), S. 521–530 1
- [NEA98] NEA NUCLEAR SCIENCE COMMITTEE: *The NEA High Priority Nuclear Data Request List*. NEA/OECD, 1998  
<http://www.nea.fr/html/science/docs/pubs/hpr1.pdf> 1
- [Neu99] NEUMANN, S.: *Aktivierungsexperimente mit Neutronen mittlerer Energien und die Produktion kosmogener Nuklide in extraterrestrischer Materie*, Universität Hannover, Dissertation, 1999 4.4.2
- [NP98] NIELSEN, S. P.; PÁLSSON, S. E.: An Intercomparison of Software for Processing Ge  $\gamma$ -Ray Spectra. In: *Nucl. Instr. Meth.* A416 (1998), S. 415–424 4
- [NRQS94] NEUMAIER, B.; RÖSCH, F.; QAIM, S. M.; STÖCKLIN, G.: Radiochemical Study of the  $^{209}\text{Bi}(p, ^7\text{Be})^{203}\text{Hg}$ -Process from 20 to 70 MeV via Identification of the Emitted Particle ( $^7\text{Be}$ ) and the Product Nucleus ( $^{203}\text{Hg}$ ). In: *Radiochimica Acta* 65 (1994), S. 1–7 3.1
- [PGN<sup>+</sup>99] PROTOSCHILL, J.; GLORIS, M.; NEUMANN, S.; MICHEL, R.; KUHNHENN, J.; HERPERS, U.; JONSSON, O.; MALMBORG, P.; KUBIK, P. W.; LEYA, I.; GILBERT, E.; LAVIELLE, B.: Cross Section Measurements for the Production of Residual Nuclei by Medium-Energy Nucleons. In: QAIM, S. M. (Hrsg.): *Progress Report on Nuclear Data Research in the Federal Republic of Germany for the Period April 1, 1998 to March 31, 1999* NEA/NSC/DOC(1999) 10, INDC(Ger.)-045, Jül-3660, 1999, S. 26–34 1
- [PKS95] PFENNIG, G.; KLEWE-NEBENIUS, H.; SEELMANN-EGGEBERT, W.: *Karlsruher Nuklidkarte*. 6. Kernforschungszentrum Karlsruhe, November 1995 5.1.2

- [PMS99] PROKOFIEV, A. V.; MASHNIK, S. G.; SIERK, A. J.: Cascade-Exciton Model Analysis of Nucleon-Induced Fission Cross Sections of Lead and Bismuth at Energies from 45 to 500 MeV Energies. In: *Nucl. Sci. Eng.* 131 (1999), S. 78–95 <http://arXiv.org/abs/nucl-th/9802027> 5.3.6
- [PNS] Spallation Neutron Source at Argonne National Laboratory (IPNS). <http://www.pns.anl.gov/> 1
- [Pro97] PROTOSCHILL, J.: *Untersuchung der Restkernproduktion durch Protonen-induzierte Reaktionen an schweren Targetelementen*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1997 4.1.2
- [Pro01] PROKOFIEV, A. V.: Compilation and Systematics of Proton-induced Fission Cross Section Data. In: PENDL, H. S. (Hrsg.): *Special Issue on Accelerator Driven Systems* Nucl. Instr. Meth. A463, 2001, S. 557–575 5.3.6
- [Qai95] QAIM, S. M.: Radiochemical Studies of Complex Particle Emission in Low and Intermediate Energy Reactions. In: *Radiochimica Acta* 70/71 (1995), S. 163–175 3.1, 3.1
- [Qai01a] QAIM, S. M.: Nuclear data for medical applications: an overview. In: *Radiochimica Acta* 89 (2001), S. 189–196 1
- [Qai01b] QAIM, S. M.: Nuclear data relevant to the production and application of diagnostic radionuclides. In: *Radiochimica Acta* 89 (2001), S. 223–232 1
- [Qai01c] QAIM, S. M.: Therapeutic radionuclides and nuclear data. In: *Radiochimica Acta* 89 (2001), S. 297–302 1
- [Rev01] REVOL, J. P.: An Accelerator-driven System for the Destruction of Nuclear Waste. In: *Prog. Nucl. Energy* 38 (2001), Nr. 1-2, S. 153–166 [http://www.crs4.it/~cfdea/EAGeneral\\_CERN\\_JPRevol.ps](http://www.crs4.it/~cfdea/EAGeneral_CERN_JPRevol.ps) 1.1, 1, 1
- [RRB<sup>+</sup>95] RUBBIA, C.; RUBIO, J. A.; BUONO, S.; CARMINATI, F.; FIÉTIER, N.; GALVEZ, J.; GELES, C.; KADI, Y.; KLAPISCH, R.; MANDRILLON, P.; REVOL, J. P.; ROCHE, C.: Conceptual Design of a Fast Neutron Operated High Power Energy Amplifier. In: *CERN/AT (ET)* 95-44 (1995) 1, 1.1
- [RT97] ROSMAN, K. J. R.; TAYLOR, P. D. P.: *Isotopic Compositions of the Elements*. (1997) <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Compositions/index.html> 4.2, 4.1.1
- [RW83] REUS, U.; WESTMEIER, W.: *Catalog of Gamma Rays from Radioactive Decay*. In: *At. Data and Nucl. Tables* 29 (1983) 4.4.2, 5.1.2

- [Sch95] SCHIEKEL, T.: *Radiochemische Untersuchungen zur Produktion kosmogener Radionuklide: Wirkungsquerschnitte, Produktionsraten, Modelle und Modellrechnungen*, Universität zu Köln, Dissertation, 1995 6.1
- [SI70] STORM, E.; ISRAEL, H. I.: Photon Cross Sections from 1 keV to 100 MeV for Elements Z=1 to Z=100. In: *Nucl. Data Tables A7* (1970), S. 565–681 4.2.5, 4.4.2
- [SIH83] SATO, N.; IWAMOTO, A.; HARADA, K.: Preequilibrium Emission of Light Composite Particles in the Framework of the Exciton Model. In: *Phys. Rev. C28* (1983), S. 1527 6.1
- [Sla76] SLAVIC, I. A.: Nonlinear Least-Squares Fitting Without Matrix Inversion Applied to Complex Gaussian Spectra Analysis. In: *Nucl. Instr. Meth.* 134 (1976), S. 285 4
- [SLKD95] SHUBIN, Y. N.; LUNEV, V. P.; KONOBAYEV, A. Y.; DITYUK, A. I.: Cross-Section Data Library MENDL-2 to Study Activation and Transmutation of Materials Irradiated by Nucleons of Intermediate Energy. In: *Report IAEA INDC(CCP)–385* (1995) 6, 6.1
- [SLKD98] SHUBIN, Y. N.; LUNEV, V. P.; KONOBAYEV, A. Y.; DITYUK, A. I.: MENDL-2P: Proton reaction data library for nuclear activation (Medium Energy Nuclear Data Library). In: *Report IAEA IAEA-NDS-204* (1998)  
<http://iaeaand.iaea.or.at/reports/nds-204.pdf> 6
- [SMN<sup>+</sup>90] STEYN, G. F.; MILLS, S. J.; NORTIER, F. M.; SIMPSON, B. R. S.; MEYER, B. R.: Production of <sup>52</sup>Fe via Proton-induced Reactions on Manganese and Nickel. In: *Appl. Rad. Isot.* 41 (1990), S. 315 4.3.1, 4.7
- [SNQ] Spallations-Neutronen-Quelle am Paul Scherrer Institut (SINQ).  
<http://sinq.web.psi.ch/> 1
- [SNS] Spallation Neutron Source (SNS). <http://www.sns.gov/> 1
- [SSB01] SALVATORES, M.; SLESSAREV, I.; BERTHOU, V.: Review and Proposals about the Role of Accelerator Driven Systems Nuclear Power. In: *Prog. Nucl. Energy* 38 (2001), Nr. 1-2, S. 167–178 1
- [SSH<sup>+</sup>95] SCHIEKEL, T.; SUDBROCK, F.; HERPERS, U.; GLORIS, M.; LANGE, H.-J.; LEYA, I.; MICHEL, R.; DITTRICH-HANNEN, B.; SYNAL, H.-A.; SUTER, M.; KUBIK, P. W.; BLANN, M.; FILGES, D.: Nuclide production by proton-induced reactions on elements ( $6 < Z < 29$ ) in the energy range from 200 MeV to 400 MeV. In: *Nucl. Instr. Meth.* B114 (1995), S. 91–119 6.1

- [Sud98] SUDBROCK, F.: *Experimentelle und theoretische Studien zur Restkernproduktion bei Spallations- und Fragmentationsreaktionen*, Universität zu Köln, Dissertation, 1998 4, 6.1
- [SZZD99] SHENG, F.; ZHUXIA, L.; ZHIXIANG, Z.; DAZHAO, D.: Analysis of proton-induced reactions on  $^{208}\text{Pb}$  with incident energy 590 MeV and 322 MeV. In: *Eur. Phys. J. A4* (1999), S. 61–68  
<http://www.edpsciences.org/articles/epja/abs/1999/01/epja157/epja157.html> 6
- [Tob81] TOBAILEM, J.: Section Efficaces des Reactions Nucleaires Induites par Protons, Deutons, Particules Alpha V – Silicium. In: *CEA-N-1466* (5) (1981), S. 103 4.3.1, 4.3.1, 4.7, 5.3.2
- [TSB<sup>+</sup>98] TITARENKO, Yu. E.; SHVEDOV, O. V.; BATYAEV, V. F.; KARPIKHIN, E. I.; ZHIVUN, V. M.; KOLDOBSKY, A. B.; IGUMNOV, M. M.; SKLOKIN, I. S.; MULAMBETOV, R. D.; SOSNIN, A. N.; YASUDA, H.; TAKADA, H.; CHIBA, S.; KASUGAI, Y.; MASHNIK, S. G.; PRAEL, R. E.; CHADWICK, M. B.; GABRIEL, T. A.; BLANN, M.: Experimental and Computer Simulation Study of Radionuclide Formation in the ADT Materials Irradiated with Intermediate Energy Protons. In: *Second Int. Topical Meeting on Nuclear Applications of Accelerator Technology (AccApp'98)*, Gatlinburg, 20-23 September 1998 <http://efimych.itep.ru/pub/accapp98.ps> 5.3.4, 6
- [TSB<sup>+</sup>01] TITARENKO, Yu. E.; SHVEDOV, O. V.; BATYAEV, V. F.; KARPIKHIN, E. I.; ZHIVUN, V. M.; KOLDOBSKY, A. B.; MULAMBETOV, R. D.; FISCHENKO, D. V.; KVASOVA, S. V.; SOSNIN, A. N.; MASHNIK, S. G.; PRAEL, R. E.; SIERK, A. J.; GABRIEL, T. A.; SAITO, M.; YASUDA, H.: Cross sections for nuclide production in 1 GeV proton-irradiated Pb-208. In: *Phys. Rev. C* (submitted November 2000) (2001) <http://arXiv.org/abs/nucl-th/0011083> 1, 5.3.2, 5.5
- [TSI<sup>+</sup>98] TITARENKO, Yu. E.; SHVEDOV, O. V.; IGUMNOV, M. M.; MASHNIK, S. G.; KARPIKHIN, E. I.; KAZARITSKY, V. D.; BATYAEV, V. F.; KOLDOBSKY, A. B.; ZHIVUN, V. M.; SOSNIN, A. N.; PRAEL, R. E.; CHADWICK, M. B.; GABRIEL, T. A.; BLANN, M.: Experimental and computer simulation study of the radionuclides produced in thin  $^{209}\text{Bi}$  targets by 130 MeV and 1.5 GeV proton-induced reactions. In: *Nucl. Instr. Meth.* A414 (1998), S. 73–99 5.4.6
- [TTG<sup>+</sup>01] TÁRKÁNYI, F. T.; TAKÁCS, S.; GUL, K.; HERMANNE, A.; MUSTAFA, M. G.; NORTIER, F. M.; OBLOZINSKY, P.; QAIM, S. M.; SCHOLTEN, B.; SHUBIN, Y. N.; YOUXIANG, Z.: Beam Monitor Reactions. In: *Report IAEA-TECDOC: Charged Particle Cross Section Database for Medical Radioisotope Production* 1211 (2001), S. 47–150 <http://www-nds.iaea.or.at/medical/> 4.3.1, 4.7, 4.3.1, 4.8, 5, 5.2.2, 5.2.6, 5.3.2, D.1

- [WA85] WAPSTRA, A. H.; AUDI, G.: The 1983 atomic mass evaluation: (I) atomic mass table. In: *Nucl. Phys.* 432 (1985), S. 1–6.2
- [WBP66] WILLIAMSON, C. F.; BOUJOT, J.-P.; PICARD, J.: Tables of Range and Stopping Power of Chemical Elements for Charged Particles of Energy 0.05 to 500 MeV. In: *Rapport CEA-R 3042* (1966) 4.1.2
- [WE40] WEISSKOPF, V. F.; EWING, P. H.: On the yield of nuclear reactions with heavy elements. In: *Phys. Rev.* 57 (1940), S. 472–3.2, 6.1
- [WEA<sup>+</sup>00] WLAZŁO, W.; ENQVIST, T.; ARMBRUSTER, P.; BENLLIURE, J.; BERNAS, M.; BOUDARD, A.; CZÁJKOWSKI, S.; LEGRAIN, R.; LERAY, S.; MUSTAPHA, B.; PRAVIKOFF, M.; REJMUND, F.; SCHMIDT, K.-H.; STÉPHAN, C.; TAIEB, J.; TASSAN-GOT, L.; VOLANT, C.: Cross-sections of spallation residues produced in 1-A GeV <sup>208</sup>Pb on proton reactions. In: *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), S. 5736–5739 <http://arXiv.org/abs/nucl-ex/0002011> 5.5
- [Wes81a] WESTMEIER, W.: Background Subtraction in Ge(Li) Gamma-Ray Spectra. In: *Nucl. Instr. Meth.* 180 (1981), S. 205–4
- [Wes81b] WESTMEIER, W.: Systematische Untersuchungen zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten für Spallationsprodukte aus der Reaktion von 600 MeV Protonen mit <sup>232</sup>Thorium. Thesis, Marburg, unpublished (Ref. aus Westmeier: *GammaW-Manual*, 1995). 1981–4
- [Wes86] WESTMEIER, W.: The Fitting of Solid State Detector Spectra. In: *Nucl. Instr. Meth.* A242 (1986), S. 437–4
- [Wes95] WESTMEIER, W.: *GammaW Manual Version 17.15*. Dr. Westmeier GmbH: Ebsdorfergrund-Mölln, 1995–4, 4.4.2
- [Wes00] WESTMEIER, W.: *Nuclide Library for GammaW for Windows*. Dr. Westmeier GmbH: Ebsdorfergrund-Mölln, 2000–4.2.4, 4.4.2, 5.1.2, A.1
- [WK00] WILLIAMS, T.; KELLEY, C.: *gnuplot – An Interactive Plotting Program*. Version 3.7.1. 2000 <http://www.gnuplot.org> 5.3
- [WSF<sup>+</sup>82] WARD, T. E.; SINGH, P. P.; FRIESEL, D. L.; YAVIN, A.; DORON, A.; D'AURIA, J. M.; SHEFFER, G.; DILLIG, M.: Radiochemical Study of the Combined (p,π<sup>0</sup>) and (p,γ) Reactions on Bismuth with Protons from 62 to 480 MeV. In: *Phys. Rev.* C26 (1982), S. 961–5.4.2
- [ZBL85] ZIEGLER, J. F.; BIRSACK, J. P.; LITTMARK, U.: *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Bd. 1. Pergamon Press: New York, 1985–4.1.2

# Teilpublikationen

Teile dieser Arbeit wurden bereits bzw. werden in folgenden Publikationen veröffentlicht oder auf den entsprechenden Konferenzen vorgestellt:

J. Kuhnhenh, U. Herpers, F. Sudbrock, P. W. Kubik, H.-A. Synal, M. Suter, M. Gloris, R. Michel:

*Protonen-induzierte Kernreaktionen an schweren Kernen bei mittleren Energien*, Symposium der Gesellschaft Deutscher Chemiker (GDCh), Fachgruppe Nuklearchemie, Dresden, 07.-09.09.1998

J. Protoschill, M. Gloris, S. Neumann, R. Michel, J. Kuhnhenh, U. Herpers, O. Jons-son, P. Malmborg, P. W. Kubik, I. Leya, E. Gilabert, B. Lavielle:

*Cross Section Measurements for the Production of Residual Nuclei by Medium-Energy Nucleons*, Progress Report on Nuclear Data Research in the Federal Republic of Germany for the Period April 1, 1998 to March 31, 1999, Edited by S. M. Qaim, NEA/NSC/DOC(1999) 10, INDC(Ger.)-045, Jül-3660, S. 26–34, 1999

C. Schnabel, M. Suter, H.-A. Synal, A. Tarabishi, J. Kuhnhenh, U. Herpers, M. Gloris, R. Michel:

*<sup>41</sup>Ca Measurements with the High-Current Ion Source at the Zurich AMS Facility*, PSI Annual Report, 2000

C. Schnabel, J. M. Lopez-Gutierrez, H.-A. Synal, I. Leya, M. Gloris, R. Michel, J. Kuhnhenh, U. Herpers:

*Determination of Production Cross Sections and Production Rates of I-129 in Order to Model its Production from Te*, Meteoritics & Planetary Science, Vol. 35, No. 5, Supplement, 2000

- J. Kuhnhenh, U. Herpers, W. Glasser, R. Michel, P. W. Kubik, M. Suter:  
*Thin Target Cross Sections for Proton-Induced Production of Radionuclides in Lead for  $E_P \leq 72$  MeV*, 5<sup>th</sup> International Conference on Nuclear and Radiochemistry (NRC5), Pontresina, Switzerland, 3.-8.11.2000, Extended Abstracts (Volume 1), S. 29–32, 2000
- J. Kuhnhenh, U. Herpers, W. Glasser, R. Michel, P. W. Kubik, M. Suter:  
*Cross Sections for Radionuclide Production Relevant to Accelerator Driven Systems*, Progress Report on Nuclear Data Research in the Federal Republic of Germany for the Period April 1, 1999 to March 31, 2000, Edited by S. M. Qaim, NEA/NSC/DOC(2000)11, INDC(Ger.)-046, Jül-3780, S. 26–27, 2000
- J. Kuhnhenh, U. Herpers, W. Glasser, R. Michel, P. W. Kubik, M. Suter:  
*Thin Target Cross Sections for Proton-Induced Production of Radionuclides in Lead for  $E_P \leq 72$  MeV*, Radiochimica Acta, in press, 2001
- R. Michel, W. Glasser, M. Uosif, J. Kuhnhenh, U. Herpers:  
*Nuclear Data for Modelling the Production of Residual Nuclides at Medium Energies*, Progress Report on Nuclear Data Research in the Federal Republic of Germany for the Period April 1, 2000 to March 31, 2001, Edited by S. M. Qaim, NEA/NSC/DOC(2001)15, INDC(Ger.)-047, Jül-3894, S. 25–30, 2000
- U. Ott, M. Altmaier, U. Herpers, J. Kuhnhenh, S. Merchel, R. Michel, R. K. Mohapatra:  
*Update on Recoil Loss of Spallation Products from Presolar Grains*, 64<sup>th</sup> Annual Meeting of the Meteoritical Society (MetSoc2001), Vatican City, 10.-14.11.2001, submitted, 2001
- M. M. H. Miah, J. Kuhnhenh, U. Herpers, R. Michel, P. W. Kubik:  
*Production of Residual Nuclides by Proton-Induced Reaction on Target W at an Energy of 72 MeV*, Int. Conf. on Nucl. Data for Sci. and Techn., Tsukuba, Japan, 07.-12.10.2001, submitted, 2001
- R. Michel, M. Gloris, J. Protoschill, U. Herpers, J. Kuhnhenh, F. Sudbrock, P. Malmberg, P. W. Kubik:  
*Cross Sections for the Production of Radionuclides by Proton-Induced Reactions on W, Ta, Pb and Bi from Thresholds up to 2.6 GeV*, Int. Conf. on Nucl. Data for Sci. and Techn., Tsukuba, Japan, 07.-12.10.2001, submitted, 2001

# Danksagungen

Die vorliegende Arbeit wurde von November 1997 bis April 2001 an der Abteilung Nuklearchemie (Institut für Biochemie) der Universität zu Köln durchgeführt.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Dr. h. c. S. M. Qaim für die interessante Aufgabenstellung und das stetige Interesse an dieser Arbeit.

Für die vielfältige Unterstützung, die kompetente und engagierte Förderung, die vertrauensvolle Betreuung und viele anregende Diskussionen danke ich Herrn Dr. U. Hershers sehr.

Den Mitarbeitern der Abteilung Nuklearchemie und des Instituts für Biochemie danke ich für das freundschaftliche Miteinander, interessante Diskussionen und mannigfaltige Hilfe. Besonders erwähnen möchte ich hierbei Herrn Dr. H. Al-Hasani, Herrn Dr. M. Altmaier, Herrn T. Bastian, Herrn E. Bolz, Herrn H.-H. Fischer, Herrn Prof. Dr. K. Thiel und Herrn U. Otto.

Ein besonderer Dank gilt auch Herrn Prof. Dr. Michel vom Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover für die angenehme Zusammenarbeit bei der gemeinsamen Durchführung der Bestrahlungsexperimente am PSI und seine Unterstützung dieser Arbeit.

Ich danke Herrn W. Glasser vom Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie der Universität Hannover für die Bereitstellung der Modellrechnungen.

Den Herren K. Jakob, M. Kreikler, M. Lohmer, G. Pillunat und W. Pyschni von der feinmechanischen und elektronischen Werkstatt am Institut für Biochemie danke ich herzlich für die versierte und sehr engagierte Hilfe in allen Fragen technischer und auch anderer Art.

Dem Zentral-Labor für chemische Analysen des Forschungszentrums Jülich GmbH danke ich für die Analyse der Bleiprobe.

Den Betreibern und dem Beschleunigerpersonal des Paul-Scherrer-Instituts, Schweiz, danke ich für die Bereitstellung der Strahlzeiten sowie für die gute Kooperation. Herrn Dr. P. W. Kubik danke ich herzlich für die umfassende und freundschaftliche Unterstützung.

Für die kritische Durchsicht der Arbeit gilt mein besonderer Dank Herrn Dr. M. Altmaier, Herrn H.-H. Fischer und Herrn Dr. D. Rost.

Meiner Frau und meiner Familie bin ich zu großem Dank verpflichtet. Ohne ihre Unterstützung und ihr Verständnis wäre diese Arbeit nicht möglich gewesen.

Ein spezieller Dank geht an die Entwickler und Förderer der Projekte MIKTEX und GNUPLOT, die diese fantastischen Programme kostenfrei zur Verfügung stellen.

Diese Arbeit wurde teilweise von der Europäischen Kommission im Rahmen der „Concerted Action: *Physical Aspects of Lead as a Neutron Producing Target for Transmutation Devices*“ gefördert.

# Lebenslauf

## Persönliche Angaben

---

Name: Jochen Kuhnhenh  
Geburtsdatum: 19.02.1970  
Geburtsort: Kassel  
Staatsangehörigkeit: Deutsch  
Familienstand: verheiratet

## Ausbildung und berufliche Tätigkeiten

---

1976 – 1980 Gerhard-Hauptmann-Grundschule in Alsfeld  
1980 – 1989 Albert-Schweitzer-Gymnasium in Alsfeld  
19.05.1989 Abitur  
1989 – 1990 Wehrdienst  
1990 – 1997 Studium der Physik an der Universität Hannover  
25.07.1997 Diplom am Zentrum für Strahlenschutz und  
Radioökologie der Universität Hannover:  
„Integration eines  $\gamma$ -Spektrometriesystems und  
Anwendung auf Bodenproben der Ukraine“  
1997 – 2001 Anfertigung der vorliegenden Dissertation an der  
Abteilung für Nuklearchemie der Universität zu Köln

  
Jochen Kuhnhenh



# Erklärung

„Ich versichere, dass ich die von mir vorgelegte Dissertation selbständig angefertigt, die benutzten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben und die Stellen der Arbeit – einschließlich Tabellen, Karten und Abbildungen –, die anderen Werken im Wortlaut oder dem Sinn nach entnommen sind, in jedem Einzelfall als Entlehnung kenntlich gemacht habe; dass diese Dissertation noch keiner anderen Fakultät oder Universität zur Prüfung vorgelegen hat; dass sie – abgesehen von unten angegebenen Teilpublikationen<sup>1</sup> – noch nicht veröffentlicht worden ist sowie, dass ich eine solche Veröffentlichung vor Abschluss des Promotionsverfahrens nicht vornehmen werde. Die Bestimmungen dieser Promotionsordnung sind mir bekannt. Die von mir vorgelegte Dissertation ist von Prof. Dr. Dr. h.c. S. M. Qaim betreut worden.“

  
Jochen Kuhnhehn

---

<sup>1</sup>Die Teilpublikationen finden sich auf Seite 151