Emission von ternären Teilchen aus den Reaktionen $^{229}Th(n_{th},f), ^{233}U(n_{th},f)$ und $^{239}Pu(n_{th},f)$

Dissertation

der Fakultät für Physik der Eberhard–Karls–Universität zu Tübingen zur Erlangung des Grades eines Doktors der Naturwissenschaften

vorgelegt von

Marcus Wöstheinrich

1999

Tag der mündlichen Prüfung:29.04.1999Dekan:Prof. Dr. K. Werner1.Berichterstatter:Prof. Dr. F. Gönnenwein2.Berichterstatter:Prof. Dr. G. Staudt

Inhaltsverzeichnis

1	Ein	eitung	7							
2	Ter	äre Spaltung	9							
	2.1	Einführung	9							
	2.2	Modelle der ternären Clusteremission	2							
		2.2.1 Das Halpern–Modell	2							
		2.2.2 Das Rubchenya–Modell)							
		2.2.3 Das Pik–Pichak–Modell	4							
3	\mathbf{Exp}	Experiment 28								
	3.1	Der Reaktor	3							
	3.2	Die Targets	9							
	3.3	Der Massenseparator Lohengrin)							
	3.4	Der RED-Magnet	7							
	3.5	Die Ionisationskammer	9							
	3.6	Die Meßelektronik	2							
	3.7	Bestimmung der Konstanten ϕ , χ und κ								
		3.7.1 Die Konstante ϕ	3							
		3.7.2 Die Konstante χ	4							
		3.7.3 Die Konstante κ	5							
4 Auswertung			7							
4.1 Identifizierung der Nuklide		Identifizierung der Nuklide	7							
		4.1.1 Identifizierung der Massen	3							
		4.1.2 Identifizierung der Kernladung	9							
		4.1.3 Parasitäre Massen)							
	4.2	Normierungen und Korrekturen)							
		4.2.1 Normierung der Energie)							

\mathbf{Li}	terat	turverz	zeichnis 125								
7	Zus	amme	nfassung 122								
		6.3.3	Schwerste ternäre Teilchen								
		6.3.2	Abhängigkeit vom Compoundsystem								
		6.3.1	Vergleich mit berechneten Ausbeuten								
	6.3	Ausbe	$euten \ldots 104$								
		6.2.3	Verhältnis Halbwertsbreiten zu mittleren Energien 103								
		6.2.2	Halbwertsbreiten								
		6.2.1	Mittlere Energien								
	6.2	Energ	ieverteilungen								
-	6.1	Ternä	re Teilchen								
6	Dis	Diskussion 94									
		5.3.3	Ausbeuten								
		5.3.2	Energieverteilungen								
		5.3.1	Detektierte ternäre Teilchen								
	5.3	Die 23	$^{9}Pu(n_{th},f)$ Reaktion								
		5.2.3	Ausbeuten								
		5.2.2	Energieverteilungen								
		5.2.1	Detektierte ternäre Teilchen								
	5.2	Die 23	3 U(n _{th} ,f) Reaktion								
		5.1.3	Ausbeuten 71								
		5.1.2	Energieverteilungen								
	0.1	5.1.1	Detektierte ternäre Teilchen								
Э	ъrg 5 1	Die ²²	e $079Th(n1, f) Reaktion 67$								
F	$\mathbf{F}_{\mathbf{n}}$	abrica	67								
		4.3.3	Gemessene Ionenladungsverteilungen 64								
		4.3.2	Verlauf der Ionenladungsverteilung 61								
		4.3.1	Die Ionenladungsverteilung im Gleichgewicht 60								
	4.3	Die Ic	onenladungsverteilung								
		4.2.5	Totzeitkorrektur								
		4.2.4	Abbrandkorrektur								
		4.2.3	Normierung der Meßdauer								
		4.2.2	Korrektur der Energie								

Danksagung	131
Lebenslauf	133

Kapitel 1

Einleitung

Vor fast 60 Jahren wurde die Kernspaltung entdeckt [Hah 39, Mei 39]. Seitdem wird auf diesem Gebiet eine intensive Forschung durchgeführt. Eine ausführliche Zusammenfassung des Kenntnisstandes bis zum Jahr 1991 findet sich in [Wag 91]. Trotz der vielfältigen Versuche, den Spaltprozeß theoretisch zu beschreiben, gibt es bis heute keine Spaltmodelle, die sämtliche experimentellen Beobachtungen zufriedenstellend beschreiben können. Die Kenntnis der Szissionspunktkonfiguration könnte helfen, zu einem besseren Verständnis des Spaltprozesses zu gelangen. Einen experimentellen Zugang zu dieser Konfiguration erhält man mittels ternärer Spaltung. Bereits Ende des zweiten Weltkrieges wurden Kernspaltungen beobachtet, bei denen nicht nur zwei Fragmente, sondern zusätzlich noch ein drittes leichtes Teilchen, das ternäre Teilchen, entsteht. Diese Spaltungen nennt man ternäre Spaltungen. Im Gegensatz dazu werden Spaltungen, bei denen nur zwei Fragmente entstehen, als binäre Spaltungen bezeichnet. Da ternäre Teilchen direkt am Szissionspunkt emittiert werden, enthalten sie unter anderem Informationen über die Form der Kerne sowie deren Anfangsenergien an diesem Punkt. Aufgrund der sehr kleinen Wahrscheinlichkeit, mit der ternäre Spaltungen vorkommen (etwa 0,2% aller Spaltungen), war es lange Zeit nur möglich, die leichten ausbeutestarken Teilchen zu untersuchen. Bis vor etwa 10 Jahren waren nur ternäre Teilchen bis zu den O-Isotopen bekannt.

Der am Institut Laue-Langevin in Grenoble betriebene Forschungsreaktor stellt für Experimente den höchsten Neutronenfluß der Welt zur Verfügung. Mittels dem dort installierten Massenseparator Lohengrin (Abschnitt 3.3) lassen sich Ausbeuten und Energieverteilungen von Spaltfragmenten für sämtliche (n_{th},f) -Reaktionen optimal bestimmen. Ein seit 1994 im Einsatz befindlicher RED- Magnet (Abschnitt 3.4) ermöglicht die Fokussierung eines Parabel–Ausschnitts am Austrittsspalt des Massenseparators auf einen Punkt. Die Verwendung des RED–Magneten führt zu einer Erhöhung der Zählrate um einen Faktor 7 pro Längeneinheit des Parabelausschnittes. Mit Hilfe dieses zusätzlichen Magneten ist es erstmals innerhalb realisierbarer Meßzeiten möglich, noch schwerere ternäre Teilchen als die O–Isotope zu untersuchen. Die Reaktion ²⁴¹Am(2n_{th},f) wurde in [Bör 93, Hes 97] untersucht, wobei es gelang, ternäre Teilchen bis zu ³⁵Si nachzuweisen. Parallel zu dieser Arbeit wurden die ternären Teilchenausbeuten der Reaktionen ²⁴⁹Cf(n_{th},f) [Dav 98] und ²⁴¹Pu(n_{th},f) [Kös 98] untersucht.

Bei Betrachtung des Massenspektrums der in den (n_{th},f)-Reaktionen emittierten Teilchen beobachtet man eine Lücke zwischen den schwersten beobachteten ternären Teilchen und den leichtesten Fragmenten. Ein Ziel dieser Arbeit war die Beantwortung der Frage, ob sich diese Lücke schließen läßt oder vielleicht ein physikalischer Prozeß dies verhindert. Denkbar wäre, daß die benötigte Energie zum Herauslösen schwerer ternärer Teilchen nicht durch den Spaltprozeß aufgebracht werden kann. Eine andere Möglichkeit wäre das Vorhandensein von einer nur begrenzten Anzahl von Halsnukleonen, falls wie üblich angenommen wird, daß das ternäre Teilchen aus dem Hals des hantelförmig deformierten Compoundkerns entsteht. In der binären Niederenergiespaltung werden nur nennenswerte Ausbeuten beobachtet, wenn das schwere Fragment das doppeltmagische ¹³²Sn und das leichte Fragment das magische ⁸²Ge enthält. Falls dies für die ternäre Spaltung ebenfalls gültig ist, so verbleibt nur eine begrenzte Anzahl von Nukleonen im Hals und steht so überhaupt für die Bildung von ternären Teilchen zur Verfügung. Es müßte ein drastischer Abfall der Ausbeuten schwerer ternärer Teilchen zu beobachten sein, falls die obigen Cluster aufgebrochen werden müssen, um Nukleonen für das ternäre Teilchen bereitzustellen. Aus diesem Grund wurde nach den schwersten, mit den heutigen technischen Mitteln noch nachweisbaren ternären Teilchen in den Reaktionen 229 Th (n_{th},f) , $^{233}U(n_{th},f)$ und 239 Pu (n_{th},f) gesucht.

Ein weiteres Ziel dieser Arbeit war die systematische Untersuchung von Energieverteilungen und Ausbeuten ternärer Teilchen in Abhängigkeit unterschiedlicher Aktinide. Diese Abhängigkeiten waren nur für die leichten ternären Teilchen bekannt. Mit den in dieser Arbeit untersuchten drei Reaktionen sowie den gleichzeitig durchgeführten Arbeiten von [Bör 93, Hes 97] über Americium, [Dav 97] über Californium und [Kös 98] über Plutonium erhält man erstmals einen Überblick über das Verhalten der schweren ternären Teilchen.

Kapitel 2

Ternäre Spaltung

2.1 Einführung

Als ternäre Kernspaltung wird eine Spaltung bezeichnet, bei der am Szissionspunkt drei (geladene) Teilchen existieren. Im Gegensatz zur binären Spaltung werden nicht nur zwei Spaltfragmente, sondern zusätzlich noch ein drittes, leichtes Teilchen gebildet. Dieses Teilchen bezeichnet man als ternäres Teilchen.

In Abbildung 2.1 ist aus einer der ersten Veröffentlichungen über ternäre Spaltung [San 47] ein Beispiel solch eines Prozesses gezeigt. Eine photographische Platte, die mit einer 10 %-igen Uranyl-Nitrat Lösung getränkt war, wurde mit langsamen Neutronen beschossen. Man beobachtet, daß von einem Punkt drei Spuren ausgehen. Es handelt sich dabei um die beiden Spaltfragmente, welche etwa entgegengesetzt auseinanderlaufen, sowie um das in einem ungefähr rechten Winkel zu den Fragmenten emittierte ternäre Teilchen. Bei mit thermischen Neutronen induzierten Spaltungen beträgt das Verhältnis von binären zu ternären Kernspaltungen B/T etwa $2 \cdot 10^{-3}$. Dies bedeutet, daß in etwa 0,2% aller Fälle eine ternäre Spaltung vorliegt. Das Verhältnis B/T steigt leicht mit dem Spaltbarkeitsparameter Z^2/A des Compoundkernes an. Bei der spontanen Spaltung ist B/T etwa 30 % größer, ein bis heute nicht verstandener Effekt.

Bei ternären Teilchen handelt es sich hauptsächlich um α -Teilchen. Sie besitzen mit $\overline{E}=15,9$ MeV eine deutlich höhere Energie als diejenigen, die durch α -Zerfall entstehen. Deshalb haben sie eine größere Reichweite in Materie und werden auch Long Range Alpha Particles (LRA) genannt. Etwa 90 % aller ternären Teilchen sind α -Teilchen. Bei den zweithäufigst vorkommenden Teilchen handelt es sich um Tritonen, sie besitzen einen Anteil von ca. 7 %. Etwa 99 % aller



Abbildung 2.1: Ternäre Spaltung mit einer photographischen Platte sichtbar gemacht [San 47].

ternären Teilchen sind Wasserstoff- oder Heliumisotope. Dies bedeutet, daß nur 1% eine Kernladung größer zwei besitzen. Nur diese seltenen, schweren ternären Teilchen wurden in dieser Arbeit untersucht.

Abbildung 2.2 zeigt eine schematische Darstellung der ternären Spaltung. Das ternäre Teilchen entsteht aus dem Hals des deformierten Compoundsystems. Diese Feststellung folgt aus der Beobachtung, daß — von wenigen Ausnahmen abgesehen — das ternäre Teilchen immer unter ca. 90° relativ zur Spaltachse emittiert wird (siehe Abbildung 2.2). Der mittlere Emissionswinkel des ternären Teilchens bezüglich des leichten Fragments beträgt ca. 83°. Da die Coulombabstoßung des schweren Fragments größer ist als diejenige des leichten, muß der Emissionswinkel in der Tat kleiner 90° sein. Durch einen Vergleich zwischen der binären und ternären Fragmentmassenverteilung läßt sich herausfinden, ob die Nukleonen des ternären Teilchens bevorzugt von einem bestimmten Fragment emittiert wurden. Tritonen erhalten ihre Nukleonen bevorzugt vom schweren Fragment während die ⁴He-, ⁶He-, Li- und Be-Teilchen sie von beiden Fragmenten mit gleicher Wahrscheinlichkeit erhalten [Mut 96b].

Durch die intensive Erforschung der ternären Kernspaltung erhofft man sich Erkenntnisse über die Szissionspunktkonfiguration. Die ternären Teilchen werden direkt am Szissionspunkt emittiert. Somit enthalten sie unter anderem Informationen über die Form der Kerne sowie deren Anfangsenergien an diesem Punkt. Vor kurzem wurde sogar über die Möglichkeit eines "Kernmoleküls" bei der ternären Kernspaltung berichtet [Gre 98]. Bei der Spaltung von 252 Cf(s.f.) wurde die nicht dopplerverbreiterte γ -Linie des ersten angeregten Zustandes von



Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der ternären Spaltung [Pfi 98].

¹⁰Be beobachtet [Sin 96, Ram 98]. Da die Halbwertszeit dieser angeregten Teilchen mit 125 fs viel kleiner als ihre Flugzeit zum Detektor ist, müßte die γ -Strahlung im Flug emittiert werden und somit dopplerverbreitert sein. Da diese Verbreiterung nicht beobachtet wird, kann angenommen werden [Gre 98], daß die ¹⁰Be-Teilchen die γ -Strahlung nicht im Flug emittieren, sondern während sie sich noch "zwischen" den Fragmenten befinden. Mit dieser Annahme müssen sich die ¹⁰Be-Teilchen im Verhältnis zur Dauer der Kernspaltung sehr lange "zwischen" den Fragmenten aufhalten. Somit kann von einem "Kernmolekül" gesprochen werden.

In dieser Arbeit wurden die Energieverteilungen und Ausbeuten ternärer Teilchen bestimmt. Es werden im folgenden verschiedene Modelle zur Beschreibung der Ausbeuten ternärer Teilchen vorgestellt. In Kapitel 6.3.1 wird ein Vergleich zwischen den in diesen Messungen experimentell bestimmten Ausbeuten und den nach dem Halpern-Modell berechneten durchgeführt.



Abbildung 2.3: Binäre und ternäre Konfiguration direkt nach der Spaltung [Hal 71].

2.2 Modelle der ternären Clusteremission

2.2.1 Das Halpern–Modell

Im Modell von Halpern [Hal 71] wird von der Vorstellung ausgegangen, daß die ternären Teilchen aus dem Hals zwischen den beiden Fragmenten stammen. In Abbildung 2.3 ist die Fragmentkonfiguration direkt nach der Spaltung für den binären und ternären Fall dargestellt. Zur ternären Konfiguration gelangt man, indem das ternäre Teilchen unter Erhaltung des Massen- beziehungsweise Ladungsmittelpunktes zwischen die beiden Fragmente plaziert wird. Die Erhaltung des Massenmittelpunktes führt zu der in Abbildung 2.3 gezeigten Verschiebung von Fragment 2 zwischen dem binären und ternären System. Halpern bezeichnet als Energiekosten $E_{\rm C}$ der ternären Teilchen diejenige Energie, die aufgewendet werden muß, um von der binären zur ternären Konfiguration zu gelangen. Für die Energiekosten gilt:

$$E_{\rm C} = E_{\rm B} + \Delta V_{\rm Coul}^{\rm ter-bin} + K$$

mit
$$E_{\rm C}$$
 : Energiekosten des ternären Teilchens
 $E_{\rm B}$: Bindungsenergie des ternären Teilchens
bzgl. des Mutterfragments
 $\Delta V_{\rm Coul}^{\rm ter-bin}$: Differenz zwischen den Coulombenergien des
ternären und binären Systems
 K : mittlere kinetische Energie, mit der das ternäre
Teilchen entsteht

In diesem Modell wird die Annahme gemacht, daß mit der Erhöhung der Energiekosten eines ternären Teilchens seine Ausbeute abnimmt. Desweiteren wird davon ausgegangen, daß diese Energiekosten von der Deformationsenergie des Compoundkernes aufgebracht werden. Dies bedeutet, daß für die ternäre Spaltung eine große Deformation erforderlich ist. Wenn dann der Kern spaltet, reißt sein Hals und die beiden Halsstümpfe schnellen in die beiden Fragmente zurück, wobei ein Teil der Halsnukleonen ein ternäres Teilchen bilden können. In der binären Spaltung wird der Abstand, den die beiden Fragmentoberflächen direkt nach der Spaltung besitzen, als Tip-Distanz bezeichnet (siehe Abbildung 2.3). Sie ist bei großen Deformationen, d.h. bei ternärer Spaltung, groß.

Halpern setzte für die Differenz der Coulombenergien unter der Annahme, daß das ternäre Teilchen von Fragment 2 stammt, die Näherung

$$\Delta V_{\text{Coul}}^{\text{ter-bin}} = \left(\frac{Z_2 Z_3}{d} + \frac{Z_1 Z_3}{4d}\right) \cdot e^2$$

an. Der Abstand der Ladungsmittelpunkte der Fragmente im binären Fall wird dabei mit 2*d* bezeichnet (siehe Abbildung 2.3). Die Fragmente und das ternäre Teilchen werden als Punktladungen betrachtet. Desweiteren wurde eine kleine Kernladungszahl des ternären Teilchens bezüglich den Fragmenten angenommen, so daß Terme mit Z_3^2 vernachlässigt werden können. In einer Erweiterung des Modells [Wös 96] wird unter anderem auf die Näherung einer kleinen Kernladungszahl des ternären Teilchens verzichtet. In diesem Fall ergibt sich:

$$\Delta V_{\text{Coul}}^{\text{ter-bin}} = \frac{Z_1 Z_3}{d} + \frac{Z_3 (Z_2 - Z_3)}{d(1 + \frac{A_3}{A_2 - A_3})} + \frac{Z_1 (Z_2 - Z_3)}{d(2 + \frac{A_3}{A_2 - A_3})} - \frac{Z_1 Z_2}{2d}$$

Den Abstand d der Ladungs- beziehungsweise Massenmittelpunkte der Fragmente im binären Fall erhält man aus der Tip-Distanz (tip). Es gilt:

$$tip = 2d - r_0 A_1^{\frac{1}{3}} - r_0 A_2^{\frac{1}{3}}$$

Die Radiuskonstante r_0 wurde mit 1,29 fm angesetzt [Mus 95]. Die Tip-Distanz läßt sich aus der TKE-Verteilung der Fragmente abschätzen. Fragmente mit kleinen kinetischen Energien stammen von Compoundkernen mit großen Deformationen. Da ternäre Spaltung in diesem Modell bei großen Deformationen vorkommt, wurde der Abstand der Fragmente mit einer totalen kinetischen Energie von $TKE = \overline{TKE} - 3\sigma_{TKE}$ direkt nach der Spaltung berechnet. Dieser Abstand wird als Tip-Distanz angesetzt. Da eine Änderung der Tip-Distanz um nur einen Femtometer bereits die totale kinetische Energie TKE der Fragmente um ca. 10 MeV ändert, kann diese Distanz etwa auf einen Femtometer genau bestimmt werden.

Die Bindungsenergie $E_{\rm B}$ läßt sich als Differenz $\Delta Q = Q^{\rm bin} - Q^{\rm ter}$ zwischen den *Q*-Werten der binären und ternären Spaltung darstellen. Die *Q*-Werte können aus Massentafeln bestimmt werden. Es wird davon ausgegangen, daß das Fragment 2 (siehe Abbildung 2.3), von welchem das ternäre Teilchen emittiert wird, entweder das schwere oder leichte Fragment darstellt.

Wegen der großen Tip-Distanz werden bei der Berechnung der Energiekosten $E_{\rm C}$ die Kernkräfte vernachlässigt. Es wird angenommen, daß das ternäre Teilchen mit einer kinetischen Anfangsenergie K von nur wenigen MeV entsteht. Diese Anfangsenergie wird bei der Berechnung der Energiekosten ebenfalls vernachlässigt.

Um die Energiekosten $E_{\rm C}$ eines ternären Teilchens bestimmen zu können, müssen die Massen- und Kernladungszahlen der zugehörigen Fragmente bekannt sein. Für ein bestimmtes ternäres Teilchen sind viele unterschiedliche Aufteilungen der Neutronen und Protonen auf die Fragmente möglich. Da diese Aufteilungen nicht bekannt sind, werden in dieser Arbeit zwei Extremfälle betrachtet.

Im ersten Fall geht man davon aus, daß als schweres Fragment immer das doppeltmagische ¹³²Sn-Nuklid vorliegt. Das ternäre Teilchen stammt vom komplementären leichten Fragment. In [Hes 97] wurde gezeigt, daß beim ²⁴³Am* die Energiekosten fast immer minimal werden, falls bei der Berechnung ¹³²Sn als schweres Fragment angesetzt wird. Fast alle ternären Teilchen besitzen bei dieser Aufteilung der Kernladungen und Neutronen auf die Fragmente die niedrigsten Energiekosten. Dies ist verständlich, da in einem doppeltmagischen Kern die Nukleonen besonders stark gebunden sind. Falls das ternäre Teilchen ein schweres Fragment mit einem oder mehreren fehlenden Nukleonen zur doppeltmagischen Konfiguration übriglassen würde, müßte es für diese Nukleonen besonders viel Energie aufwenden. Deshalb könnte ¹³²Sn bevorzugt als schweres



Abbildung 2.4: Gewichtete Energiekosten $E_{\rm C}$ für ²³⁰Th^{*} und ²³⁴U^{*}. Für die Berechnung wurde angenommen, daß das schwere Fragment das Mutterfragment des ternären Teilchens darstellt.

Fragment entstehen, und die schweren ternären Teilchen würden somit ihre Nukleonen hauptsächlich auf Kosten des leichten Fragments erhalten.

Im zweiten Fall geht man davon aus, daß bei jeder Verteilung von Protonen und Neutronen auf die Fragmente die Emission eines ternären Teilchens grundsätzlich möglich ist. Die Energiekosten werden mit Hilfe der gut bekannten binären Massen- und Ladungsverteilung der Fragmente gewichtet. Es gilt für diesen Fall:

$$E_{\rm C} = \frac{\sum_i E_{{\rm C},i}\omega_i}{\sum_i \omega_i} = \frac{\sum_i \Delta Q_i^{\rm bin-ter}\omega_i}{\sum_i \omega_i} + \frac{\sum_i \Delta V_{{\rm Coul},i}^{\rm ter-bin}\omega_i}{\sum_i \omega_i}$$

Die ω_i geben die Wahrscheinlichkeiten für die Massen- und Kernladungsaufteilungen der Fragmente im binären Fall an. Bei diesem Ansatz kann bei der Berechnung von $E_{\rm C}$ das ternäre Teilchen sowohl vom leichten Fragment als auch vom schweren Fragment stammen.

Die Abbildungen 2.4 und 2.5 zeigen die Energiekosten verschiedener ternärer Teilchen für die Reaktionen ²²⁹Th (n_{th},f) , ²³³U (n_{th},f) und ²³⁹Pu (n_{th},f) . In Abbildung 2.4 wurden die Energiekosten bezüglich den binären Massen- und Kernladungsverteilungen der Fragmente gewichtet. Desweiteren wurde davon ausgegangen, daß das schwere Fragment das Mutterfragment des ternären Teilchens darstellt. Der besseren Übersicht halber wurde die Achse der Massenzahl unterteilt. In Abbildung 2.5 wurde ¹³²Sn als schweres Fragment angenommen. Das



Abbildung 2.5: Energiekosten $E_{\rm C}$ für ²³⁴U^{*} und ²⁴⁰Pu^{*}. Für die Berechnung wurde angenommen, daß es sich beim schweren Fragment um ¹³²Sn handelt sowie daß das leichte Fragment das Mutterfragment des ternären Teilchens darstellt.

Mutterfragment des ternären Teilchens ist in diesem Fall das leichte Fragment. Unabhängig von der Reaktion existiert bei fast jedem Element ein Isotop mit einem eindeutigen Minimum in den Energiekosten. Beispiele hierfür sind ⁴He, ⁷Li, ¹⁰Be und ¹⁴C. Diese Isotope sollten die größten Ausbeuten für das jeweilige Element besitzen. In den Abbildungen 2.4 und 2.5 läßt sich ein gerade-ungerade Effekt beobachten. Die Energiekosten für Teilchen mit geraden Kernladungsoder Neutronenzahlen liegen systematisch höher als für ungerade Kernladungsoder Neutronenzahlen. Dies ist eine Folge der Systematik in den Bindungsenergien der ternären Teilchen bezüglich ihres Mutterfragments.

Einen Vergleich zwischen den gewichteten Energiekosten und den mit ¹³²Sn als schweren Fragment bestimmten $E_{\rm C}$ läßt sich anhand der Reaktion ²³³U(n_{th},f) in den Abbildungen 2.4 und 2.5 durchführen. Für leichte ternäre Teilchen ist der Betrag der Energiekosten in beiden Fällen praktisch gleich. Für schwere Teilchen ist allerdings ein deutlicher Unterschied zu beobachten. Im Falle des ¹³²Sn als schweres Fragment besitzen die Ne–Isotope mit 57,5 MeV für A = 24 ein Minimum in den Energiekosten. Gewichtet man die Energiekosten nach den binären Massen– und Kernladungsverteilungen, so erhält man 65,8 MeV. Das Minimum für Neon verschiebt sich zum ²⁶Ne–Nuklid, allerdings mit einem nur minimalen Unterschied in den Energiekosten verglichen mit ²⁴Ne. Die Differenz zwischen den unterschiedlich berechneten Energiekosten wird bei den schweren ternären Teil-



Abbildung 2.6: Abhängigkeit zwischen Ausbeute und Energiekosten der ternären Teilchen für 241 Am $(2n_{th},f)$. Die Pfeile geben obere Grenzen an. Die Ausbeuten sind aus [Nas 92, Neu 92, Bör 93, Hes 97].

chen immer größer. Desweiteren verschwinden bei einer Gewichtung der $E_{\rm C}$ für schwere ternäre Teilchen die eindeutigen Minima der Elemente, mehrere Isotope besitzen fast identische Werte.

Die Grundidee des Modells besteht in der Annahme, daß mit der Erhöhung der Energiekosten eines ternären Teilchens seine Ausbeute abnimmt. Daß diese Annahme berechtigt ist, sieht man in Abbildung 2.6. Es ist die Abhängigkeit ternärer Teilchenausbeuten von ihren Energiekosten für die Reaktion ²⁴¹Am($2n_{th}$,f) dargestellt. Die Energiekosten wurden gewichtet und unter der Annahme bestimmt, daß das schwere Fragment das Mutterfragment des ternären Teilchens darstellt. Die Ausbeuten sind bezüglich der Ausbeute des α -Teilchens angegeben, wobei diese wiederum auf 10⁴ gesetzt wurde. Jeder Punkt in der Abbildung entspricht einem ternären Teilchen. Ganz links mit den kleinsten Energiekosten und der größten Ausbeute befindet sich das α -Teilchen. Im allgemeinen läßt sich sagen, daß mit steigender Masse und/oder Kernladung die Ausbeuten sinken sowie die Energiekosten ansteigen. Die Pfeile geben obere Grenzen der Ausbeuten an, d.h. diese Teilchen wurden nicht beobachtet.

In der logarithmischen Darstellung der Ausbeute als Funktion der Energieko-



Abbildung 2.7: Vergleich zwischen experimentellen und berechneten Ausbeuten der Reaktion 241 Am $(2n_{th},f)$. Bei der Berechnung wurde das schwere Fragment als 132 Sn gesetzt.

sten in Abbildung 2.6 läßt sich eine lineare Abhängigkeit vermuten. Somit kann von folgendem Ansatz

$$Y_{\rm TP} = C * \exp(-(P_1 * E_{\rm C} + P_2))$$

ausgegangen werden. P_1 und P_2 sind phänomenologische Fitparameter. Man könnte fälschlicherweise diesen Ansatz mit einem Boltzmannfaktor $\exp(-\frac{E_{\rm C}}{kT})$ identifizieren. Das Halpern-Modell ist im Gegensatz zu anderen Modellen, wie z.B. dasjenige von Rubchenya-Yavshits (siehe Abschnitt 2.2.2), kein statistisches Modell. Deshalb sollte der Parameter P_1 nicht mit einer Temperatur in irgendeiner Phase des Spaltprozesses identifiziert werden. Die Ausbeuten der ternären Teilchen werden im allgemeinen bezüglich den α -Teilchen angegeben. Diese Verhältnisbildung hat zur Folge, daß nur der Parameter P_1 benötigt wird um die berechneten Ausbeuten an die experimentellen anzupassen.

In Abbildung 2.7 und 2.8 werden für die Reaktion 241 Am $(2n_{th},f)$ die experimentellen mit den berechneten Ausbeuten verglichen. Der Unterschied zwischen den Abbildungen besteht in der Berechnung der Energiekosten. In Abbildung 2.8 wurden sie gewichtet, während in Abbildung 2.7 bei der Berechnung das schwere



Abbildung 2.8: Vergleich zwischen experimentellen und berechneten Ausbeuten der Reaktion 241 Am $(2n_{th},f)$. Bei Berechnung der Ausbeuten wurden die Energiekosten mittels der Massen- und Kernladungsverteilung der binären Spaltung gewichtet.

Fragment als ¹³²Sn gesetzt wurde. Die experimentellen Ausbeuten sind der Literatur entnommen [Nas 92, Neu 92, Bör 93, Hes 97]. Die Ausbeuten der He– und Li–Isotope werden besser in Abbildung 2.7 bei festgehaltenem ¹³²Sn beschrieben. Bei ternären Teilchen mit einer "mittleren" Massenzahl ist die Übereinstimmung zwischen Experiment und Rechnung nach beiden Ansätzen für die Energiekosten etwa gleich gut. Die Ausbeuten der schweren ternären Teilchen werden dagegen mit dem Ansatz von ¹³²Sn als schwerem Fragment überschätzt, bei einer Gewichtung der Energiekosten gelangt man zu einem besseren Ergebnis. Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die nach dem Halpern–Modell berechneten Ausbeuten bis auf etwa eine Größenordnung genau die experimentellen Daten beschreiben. Bei der Reaktion ²⁴¹Am(2n_{th},f) zeichnet sich keine der beiden betrachteten Berechnungsmöglichkeiten besonders aus. Einen detaillierteren Vergleich zwischen den mit diesem Modell berechneten und experimentellen Ausbeuten erfolgt in Abschnitt 6.3.1 anhand der in dieser Arbeit untersuchten Reaktionen ²³³U(n_{th},f) und ²³⁹Pu(n_{th},f).

2.2.2 Das Rubchenya–Modell

Beim Halpern-Modell wird eine Drei-Teilchen-Konfiguration am Szissionspunkt vorgegeben, ohne auf den Entstehungsprozeß einzugehen. Es handelt sich um ein statisches Modell. Im Gegensatz dazu ist das Rubchenya-Modell [Rub 82, Rub 84, Rub 88] ein dynamisches Modell. Es wird der gesamte Spaltprozeß (vom Sattelpunkt bis zum Szissionspunkt) betrachtet. Dieses Modell basiert auf folgenden Annahmen:

- Auf dem Weg vom Sattel- zum Szissionspunkt bildet sich zwischen den Fragmenten ein Hals aus. Mit wachsender Deformation wird die Länge des Halses größer, während sein mittlerer Durchmesser konstant bleibt. Die Wahrscheinlichkeit eines Halsrisses ist an jeder Stelle des Halses und zu jedem Zeitpunkt gleich groß.
- Der Halsriß setzt bei einer endlichen Halsdicke ein. Er wird durch Fluktuationen in der instabilen Halsregion (z.B. Oberflächenschwingungen) hervorgerufen. Die Dauer des Risses wird der Dauer der Bewegung eines Nukleons entlang des Risses gleichgesetzt.
- Falls zwei statistisch unabhängige Halsrisse innerhalb eines Zeitraumes, der der Dauer eines Halsrisses entspricht, einsetzen, tritt ternäre Spaltung auf. Der Teil des Halses, der sich zwischen den beiden Rissen befindet, wird zum primären ternären Teilchen. Da das ternäre System sehr kompakt ist, kann es danach zu einem weiteren Nukleonenaustausch kommen. Dieser findet zwischen den wechselwirkenden Kernen und besonders zwischen dem leichten Fragment und dem primären ternären Teilchen statt, da sich ihre Dichteverteilungen zum großen Teil überlappen. Erst nach dem Nukleonenaustausch hat sich das endgültige ternäre Teilchen gebildet.

Es wurde angenommen, daß während der Existenz des Halses, also praktisch ab dem Sattelpunkt, sein Riß zu jedem Zeitpunkt gleich wahrscheinlich ist. Da am Ende der Lebensdauer des Halses auf jeden Fall Spaltung auftritt, ist die Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für binäre Spaltung B invers proportional zur mittleren Lebensdauer des Halses:

$$B \sim \frac{1}{\tau_{\text{Neck}}}$$

Die mittlere Lebensdauer des Halses wird als τ_{neck} bezeichnet. Sie entspricht etwa der Zeit, die der Compoundkern für die Bewegung vom Sattelpunkt zum Szissionspunkt benötigt. Die Wahrscheinlichkeit pro Zeiteinheit für ternäre Spaltung Tsetzt sich aus den statistisch unabhängigen Wahrscheinlichkeiten für einen ersten Halsriß sowie für einen zweiten Riß innerhalb eines Zeitraumes, der der Rißdauer des Halses entspricht, zusammen:

$$T \sim \frac{1}{\tau_{\rm Neck}} \cdot \frac{\tau_{\rm Sc}}{\tau_{\rm Neck}}$$

Die mittlere Dauer des Halsrisses wird als τ_{Sc} bezeichnet. Für das Verhältnis der ternären zu den binären Spaltwahrscheinlichkeiten ergibt sich somit:

$$P_t = \frac{T}{B} = c \cdot \frac{\tau_{\rm Sc}}{\tau_{\rm Neck}}$$

Der Koeffizient c berücksichtigt unter anderem eine eventuell nicht vollständige statistische Unabhängigkeit der beiden Risse sowie die Absorption des ternären Teilchens durch eines der Fragmente.

Die relative Wahrscheinlichkeit P_t für ternäre Spaltung läßt sich unter den oben genannten Annahmen durch makroskopische Größen mittels einer semiklassischen Beschreibung der Bewegung des Spaltsystems vom Sattel- zum Szissionspunkt ausdrücken. Man erhält:

$$P_{\rm t} = p \cdot A^{\frac{2}{3}} (\frac{Z^2}{A} - q) (\frac{Z^2}{A^{\frac{2}{3}}} - f)$$

p ist eine Normierungskonstante. Der Parameter q hängt von der inneren Reibung des spaltenden Systems ab, während der Parameter f unter anderem die Kernkraft an der Kernoberfläche berücksichtigt. Bei Verwendung von teils experimentellen sowie teils theoretischen Werten für p, q und f erhält Rubchenya [Rub 82] als endgültiges Ergebnis:

$$P_{\rm t} = 1,081 \cdot 10^{-7} \cdot A^{\frac{2}{3}} \left(\frac{Z^2}{A} - 26,12\right) \left(\frac{Z^2}{A^{\frac{2}{3}}} - 178,13\right)$$

In Abbildung 2.9 ist ein Vergleich zwischen den berechneten Wahrscheinlichkeiten P_t und den gemessenen Werten gezeigt. In der induzierten Spaltung ist die Übereinstimmung besser als im Falle der spontanen Spaltung, bei der die berechneten Werte deutlich unterhalb den experimentellen liegen. Rubchenya erklärt diese Tatsache damit, daß in seinem Modell starke Reibungseffekte auf dem Weg



Abbildung 2.9: Abhängigkeit der ternären Spaltwahrscheinlichkeit P_t vom Spaltbarkeitsparameter Z^2/A . Bei den experimentellen P_t -Werten [Wag 91] wird zwischen thermisch induzierter und spontaner Spaltung unterschieden.

vom Sattelpunkt zum Szissionspunkt angenommen wurden. Da die Anfangsbedingungen der spontanen und induzierten Spaltung unterschiedlich sind, könnten die Reibungskräfte in der spontanen Spaltung kleiner sein. Dies würde zu einem höheren $P_{\rm t}$ -Wert in der spontanen Spaltung führen. Insgesamt wird aber der Trend der ternären Teilchenausbeute als Funktion des Spaltbarkeitsparameters Z^2/A ganz gut beschrieben.

Für die Ausbeuten der einzelnen ternären Teilchen erhält man unter der Annahme, daß nach der Spaltung das leichte Fragment und das ternäre Teilchen bezüglich ihrer inneren Freiheitsgrade im Gleichgewicht sind:

$$Y_3(A_3, Z_3) = C_{\rm L} \exp(\frac{\overline{Q}_{\rm qq} - V_{\rm Coul}(\overline{A}_{\rm L}, \overline{Z}_{\rm L}; A_3, Z_3)}{\overline{T}})$$



Abbildung 2.10: Vergleich experimenteller und nach dem Rubchenya–Modell berechneter Ausbeuten ternärer Teilchen anhand der Reaktion 241 Am $(2n_{th},f)$.

mit	$V_{ m Coul}(\overline{A}_{ m L},\overline{Z}_{ m L};A_3,Z_3)$:	$rac{e^2 Z_3 (\overline{Z}_{\mathrm{L}} - Z_3)}{R_{\mathrm{c}}}$
	$R_{ m c}$:	$r_{\rm c}((\overline{A}_{\rm L} - A_3)^{\frac{1}{3}} + A_3^{\frac{1}{3}})$
	$r_{ m c}$:	Radiuskonstante
	A_3, Z_3	:	Masse und Ladung des endgültigen ternären
			Teilchens
	$\overline{A}_{ m L}, \overline{Z}_{ m L}$:	mittlere Masse und Ladung des Systems
			leichtes Fragment + ternäres Teilchen
	\overline{T}	:	mittlere effektive Kerntemperatur
	\overline{Q}_{qq}	:	Q-Wert Differenz zwischen primären
			ternären Zustand und endgültigen Zustand

In Abbildung 2.10 ist ein Vergleich zwischen den mit diesem Modell berechneten und den experimentellen Ausbeuten der Reaktion ²⁴¹Am(2n_{th},f) gezeigt. Die gemessenen Ausbeuten wurden der Literatur entnommen [Nas 92, Neu 92, Bör 93, Hes 97]. Bei der Berechnung der Ausbeuten wurde die mittlere effektive Kerntemperatur auf $\overline{T} = 98,1456 - 5,4914 \cdot (Z^2/A) + 0,07844 \cdot (Z^2/A)^2$ gesetzt [Rub 94], wobei A und Z die Massenzahl beziehungsweise Kernladung des spaltenden Systems sind. Analog dem Halpern-Modell ist die Übereinstimmung zwischen den berechneten und experimentellen Ausbeuten bis auf etwa eine Größenordnung genau.

2.2.3 Das Pik–Pichak–Modell

Im Modell von Pik–Pichak [Pik 94] wird davon ausgegangen, daß die Emission eines ternären Teilchens adiabatisch vonstatten geht. Aus der Wahrscheinlichkeit für einen adiabatischen Prozeß in erster Ordnung der Störungstheorie erhält man die Wahrscheinlichkeit für ternäre Spaltung:

$$W = b \cdot \exp\left(-\frac{\Delta\epsilon_{\rm p}}{\Gamma}\right)$$

Die Größen b und Γ stellen phänomenologische Parameter dar. Die Differenz $\Delta \epsilon_{\rm p}$ gibt formal den Unterschied zwischen den negativen kinetischen Energien des ternären $\epsilon_{\rm p}^{\rm T}$ und binären Systems $\epsilon_{\rm p}^{\rm B}$ am Szissionspunkt an. Die negative kinetische Energie des ternären Systems ergibt sich aus:

$$\epsilon_p^{\mathrm{T}} = -Q^{\mathrm{T}} + E_{\mathrm{Coul}}^{\mathrm{T}} + E_{\mathrm{D}}^{\mathrm{T}} + E_{\mathrm{t}}^{\mathrm{T}}$$

T symbolisiert das ternäre System. Q^{T} gibt den Q-Wert der ternären Spaltung an. Die Coulombenergie $E_{\mathrm{Coul}}^{\mathrm{T}}$ des ternären Systems ergibt sich mittels:

$$E_{\rm Coul}^{\rm T} = \frac{Z_{\rm L} Z_{\rm H} e^2}{R_{\rm L} + R_{\rm H} + 2R_{\rm p}} + \frac{Z_{\rm L} Z_{\rm p} e^2}{R_{\rm L} + R_{\rm p}} + \frac{Z_{\rm H} Z_{\rm p} e^2}{R_{\rm H} + R_{\rm p}}$$

Die Indizes L, H und p stehen für das leichte und schwere Fragment sowie das ternäre Teilchen. Z gibt die Kernladung und $R = r_0 A^{1/3} (1 + \sum_n \alpha_n) = r A^{1/3}$ den Radius des jeweiligen Teilchens an. Die α_n -Koeffizienten berücksichtigen die Deformation der Teilchen. Die Deformationsenergie E_D^T und innere Anregungsenergie E_t^T der Fragmente und ternären Teilchen am Szissionspunkt ergeben zusammen die totale Anregungsenergie TXE^T . Die negative kinetische Energie des binären Systems ergibt sich analog zu:

$$\epsilon_{\rm p}^{\rm B} = -Q^{\rm B} + E_{\rm Coul}^{\rm B} + E_{\rm D}^{\rm B} + E_{\rm t}^{\rm B}$$

B symbolisiert das binäre System. $Q^{\rm B}$ gibt den Q-Wert der binären Spaltung an. Die Deformationsenergie $E_{\rm D}^{\rm B}$ und innere Anregungsenergie $E_{\rm t}^{\rm B}$ der Fragmente ergeben zusammen die totale Anregungsenergie $TXE^{\rm B}$. Die Coulombenergie $E_{\rm Coul}^{\rm B}$ für den binären Fall erhält man aus:

$$E_{\rm Coul}^{\rm B} = \frac{Z_{\rm L} Z_{\rm H} e^2}{(R_{\rm L} + R_{\rm H})}$$

Die Differenz $\Delta \epsilon_{\rm p}$ läßt sich durch die totale Anregungsenergie und die im Halpern-Modell eingeführten Energiekosten $E_{\rm C}$ ausdrücken:

$$\Delta \epsilon_{\rm p} = \epsilon_{\rm p}^{\rm T} - \epsilon_{\rm p}^{\rm B}$$

= $-(Q^{\rm T} - E_{\rm Coul}^{\rm T}) + (E_{\rm D}^{\rm T} + E_{\rm t}^{\rm T}) - (-(Q^{\rm B} - E_{\rm Coul}^{\rm B}) + (E_{\rm D}^{\rm B} + E_{\rm t}^{\rm B}))$
= $-(Q^{\rm T} - E_{\rm Coul}^{\rm T}) + TXE^{\rm T} - (-(Q^{\rm B} - E_{\rm Coul}^{\rm B}) + TXE^{\rm B})$
= $E_{\rm C} - (TXE^{\rm B} - TXE^{\rm T})$
= $E_{\rm C} - \Delta TXE^{\rm B-T}$

Dies bedeutet, daß im Pik-Pichak-Modell zusätzlich zu den Energiekosten des Halpern-Modells die totalen Anregungsenergien berücksichtigt werden. Hinweise für eine Abhängigkeit der ternären Teilchenausbeuten von der mittleren totalen Anregungsenergie des ternären Systems wurden in der Tat in [Mut 96b] beobachtet. Bei der Reaktion ²⁵²Cf(s.f.) findet man eine lineare Abhängigkeit zwischen dem natürlichen Logarithmus der Ausbeute ternärer Teilchen und der mittleren totalen Anregungsenergie des ternären Systems. Experimentell sinkt allerdings mit fallender Anregungsenergie TXE^{T} des ternären Systems auch dessen Ausbeute. Dieser Trend ist gegenläufig zur Abhängigkeit der Ausbeute von den Energiekosten. In diesem Sinne ist der Term ΔTXE^{B-T} im Pik-Pichak-Modell eine Korrektur der reinen Energiekostenabhängigkeit nach Halpern. Für andere Spaltsysteme sind die totalen Anregungsenergien in Abhängigkeit der ternären Teilchen noch unbekannt, dürften aber ähnliche Gesetzmäßigkeiten wie für die Reaktion ²⁵²Cf(s.f.) aufweisen.

Die Ausbeuten der ternären Teilchen werden üblicherweise bezüglich der Ausbeute der ternären α -Teilchen angegeben, wobei diese wiederum auf 10⁴ gesetzt wird. Dies ergibt:

$$W_{\mathrm{p},\alpha} = 10^4 \cdot \frac{W_{\mathrm{p}}}{W_{\alpha}} = 10^4 \cdot \exp\left(-\frac{\Delta\epsilon_{\mathrm{p},\alpha}}{\Gamma}\right)$$

Durch die Verhältnisbildung hängt $W_{p,\alpha}$ nur noch von einem einzigen phänomenologischen Parameter ab. Das Problem bei der Bestimmung der Ausbeuten nach obiger Beziehung ist die Unkenntnis der totalen Anregungsenergien. Pik-Pichak stellt daher das Postulat auf, daß die Anregungsenergie des ternären Systems unabhängig vom emittierten Teilchen ist (im Widerspruch allerdings zum Experiment). Somit ergibt sich:

$$W_{\mathrm{p},\alpha} = 10^4 \cdot \exp\left(-\frac{\Delta\epsilon_{\mathrm{p},\alpha}}{\Gamma}\right)$$



Abbildung 2.11: Vergleich zwischen experimentellen und berechneten ternären Ausbeuten der Reaktion 235 U(n_{th},f). Experimentelle Daten sind aus [Vor 72, D'Ho 80, Bau 92].

$$= 10^{4} \cdot \exp\left(-\frac{(E_{\mathrm{C},\mathrm{p}} - E_{\mathrm{C},\alpha})}{\Gamma}\right) \cdot \exp\left(-\frac{(TXE_{\mathrm{p}}^{\mathrm{T}} - TXE_{\alpha}^{\mathrm{T}})}{\Gamma}\right)$$
$$= 10^{4} \cdot \exp\left(\frac{\Delta E_{\mathrm{C}}}{\Gamma}\right)$$

Abgesehen von der unterschiedlichen Berechnung der Coulombenergien entspricht mit der Näherung $TXE_{p}^{T} = TXE_{\alpha}^{T}$ das Pik-Pichak-Modell dem Halpern-Modell.

In Abbildung 2.11 ist ein Vergleich zwischen den experimentellen und den nach Pik-Pichak berechneten Ausbeuten anhand der Reaktion 235 U(n_{th},f) gezeigt. Bei der Berechnung wurde davon ausgegangen, daß es sich beim schweren Fragment um 132 Sn handelt. Zur Berechnung der Radien der Teilchen wurde angenommen [Pik 94]:

$$r_{\rm p} = r_0 = 1.4 \,\mathrm{fm}$$

 $r_{\rm H} = r_0 (1 + \sum_n \alpha_{n,\rm H}) = 1.4 \,\mathrm{fm}$
 $r_{\rm L} = r_0 (1 + \sum_n \alpha_{n,\rm L}) = 2.146 \,\mathrm{fm}$

Der phänomenologische Parameter Γ ändert sich mit dem spaltenden System. In

Abbildung 2.11 beträgt er für die Reaktion $^{235}U(n_{th},f)$ 2,2 MeV. Γ steigt mit der Masse und/oder Kernladung des spaltenden Systems an. Für $^{239}Pu(n_{th},f)$ erhält man 2,3 MeV, für $^{241}Am(2n_{th},f)$ ergibt sich 2,4 MeV und für $^{252}Cf(s.f.)$ beträgt Γ 2,7 MeV. Diese Werte entsprechen etwa den effektiven Kerntemperaturen des Rubchenya–Modells.

Für die leichten ternären Teilchen beobachtet man in Abbildung 2.11 eine gute Übereinstimmung zwischen den berechneten und experimentellen Ausbeuten. Je größer allerdings die Massen und/oder Kernladungen der Teilchen werden, desto stärker weichen die im Pik-Pichak-Modell berechneten Werte von den im Experiment bestimmten ab. Für die Sauerstoffisotope beträgt die Abweichung etwa eine Größenordnung. Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die im Halpern-, Rubchenya- und Pik-Pichak-Modell berechneten Ausbeuten die experimentellen Ausbeuten alle etwa gleich gut beschreiben. Keines der vorgestellten Modelle zur ternären Spaltung ist allerdings wirklich zufriedenstellend.

Kapitel 3

Experiment

Die Experimente zur Bestimmung von Ausbeuten ternärer Teilchen wurden am Institut Laue-Langevin (ILL) in Grenoble durchgeführt. Dieses 1967 gegründete Institut zur Grundlagenforschung betreibt einen Hochflußreaktor mit einem Neutronenfluß von bis zu $1,2\cdot10^{15} n/(cm^2 \cdot s)$. Unter den verschiedenen Instrumenten, die den Experimentatoren zur Verfügung gestellt werden, befindet sich der Massenseparator Lohengrin. An diesem Spektrometer wurden die Ausbeuten ternärer Teilchen aus den Reaktionen ²²⁹Th(n_{th}, f), ²³³U(n_{th}, f) und ²³⁹Pu(n_{th}, f) gemessen.

3.1 Der Reaktor

Im Reaktor befindet sich ein Brennstab in der Mitte eines mit schwerem Wasser gefüllten Tanks (Durchmesser 2,5 m). Dieses schwere Wasser dient als Moderator und Kühlmittel. Der Brennstab besteht aus ca. 9 kg Uran, welches zu 93 % mit ²³⁵U angereichert wurde. Zur biologischen Abschirmung ist der Schwerwassertank von einen Leichtwassertank umgeben. Die thermische Leistung des Reaktors beträgt 58,4 MW.

Es werden thermische, kalte und heiße Neutronen zur Verfügung gestellt. Die thermischen Neutronen befinden sich im thermischen Gleichgewicht mit dem schweren Wasser, welches eine Temperatur von etwa 300 Kelvin besitzt. Ihre Geschwindigkeitsverteilung ist somit eine Maxwellverteilung mit einem Maximum bei einer Geschwindigkeit, die einer Energie von 0,026 eV entspricht. Die kalten und heißen Neutronen werden erzeugt, indem mittels spezieller Moderatoren, welche unterschiedliche Temperaturen besitzen, die thermische Energieverteilung verändert wird. Für die Erzeugung der heißen Neutronen wird eine 10 dm³ große Graphitkugel mit einer Temperatur von 2400 Kelvin benützt. Sie erhöht den Neutronenfluß für Wellenlängen kleiner 0,8 Å. Die kalten Neutronen erhält man nach Streuung in einem mit flüssigem Deuterium (T = 24 K) gefüllten Zylinder, der den Neutronenfluß für Wellenlängen größer 3 Å erhöht.

3.2 Die Targets

Das Target befindet sich im Strahlrohr des Massenseparators Lohengrin etwa 75 cm vom Mittelpunkt des Reaktorkerns entfernt. Dort ist es einem thermischen Neutronenfluß von ca. $5,3\cdot10^{14} n/(cm^2\cdot s)$ ausgesetzt. Die Neutronen induzieren im Target Kernspaltungen. Untersucht wurden die drei Spaltreaktionen ²²⁹Th(n_{th}, f), ²³³U(n_{th}, f) und ²³⁹Pu(n_{th}, f). Die in diesen Reaktionen untersuchten Aktinide wurden auf ein $20 \times 90 \times 0,3$ mm³ großes Titanblech aufgebracht. Die Targets erwärmen sich aufgrund der hohen vorkommenden Spaltraten auf mehrere hundert Grad Celsius, wobei die Kühlung nur durch Abstrahlung erfolgt. Um den Verlust von Targetmaterial durch Herausschleudern von Aktinidkernen durch Spaltprodukte ("Sputtering") zu verhindern, wurden die Targets mit einer $0,25 \,\mu$ m dicken Nickelfolie abgedeckt.

Es wurden drei Thorium-Targets verwendet, welche am Khlopin-Radium-Institut in St. Petersburg (Rußland) hergestellt wurden. Sie besaßen folgende Spezifikationen:

Masse ²²⁹ Th	$53 \mu\mathrm{g}, 56 \mu\mathrm{g} \text{ und } 5$	$8\mu{ m g}$
Isotopenzusammensetzung	$(0,\!005{\pm}0,\!0003)\%$	$^{228}\mathrm{Th}$
	$(7,2{\pm}0,3)\%$	$^{229}\mathrm{Th}$
	$(92,\!8{\pm}0,\!5)\%$	$^{232}\mathrm{Th}$
Fläche	$5 \times 50 \text{ mm}^2$	
Massenbelegung Thorium	$294\mu{ m g/cm^2},311\mu{ m g}$	$ m g/cm^2~und~322\mu g/cm^2$

Die Targetmassen sind auf 5% genau bestimmt. Da die Halbwertszeit von ²²⁹Th 7340 Jahre sowie diejenige von ²³²Th 1,4·10¹⁰ Jahre beträgt, hat sich die Zusammensetzung des Targets in dem Zeitraum zwischen Herstellung (Mai 1996) und Messung (1996, 1997 und 1998) nicht wesentlich geändert. Der geringe Beitrag von ²²⁸Th ist zu vernachlässigen. Der hohe Anteil von ²³²Th wirkt sich aufgrund des kleinen Spaltquerschnittes von $\sigma_{\rm f} = 3.9 \cdot 10^{-5}$ barn im Vergleich zu $\sigma_{\rm f} = 30.5$ barn für ²²⁹Th nicht störend auf die ²²⁹Th-Messung aus.



Abbildung 3.1: Der Massenseparator Lohengrin [ILL 97].

Das ²³³U-Target besaß eine Masse von $(1245\pm125) \mu g$. Diese Masse wurde, über eine Fläche von $5\times70 \text{ mm}^2$ verteilt, auf das Titanblech aufgebracht. Dies ergibt eine Massenbelegung von $(356\pm36) \mu g/\text{cm}^2$. Das ²³⁹Pu-Target besaß eine Masse von $(1070\pm107) \mu g$. Diese Masse wurde analog dem ²³³U-Target auf eine Fläche von $5\times70 \text{ mm}^2$ aufgebracht. Als Massenbelegung ergibt sich damit $(306\pm31) \mu g/\text{cm}^2$.

3.3 Der Massenseparator Lohengrin

Die vom Target emittierten Teilchen werden mit dem 1974 in Betrieb gegangenen Massenseparator Lohengrin nach ihrem Verhältnis von Massen zu Ionenladungszahl $\frac{m}{q}$ und ihrem Verhältnis kinetischer Energie zu Ionenladungszahl $\frac{E_{\rm kin}}{q}$ selektiert. Der Separator ist ein Parabel-Massenspektrometer und besteht aus einem Sektormagneten und einem Sektorzylinderkondensator (siehe Abbildung 3.1). Er arbeitet mit räumlich getrennten Feldern, wobei sich der Magnet vom Target aus betrachtet vor dem Kondensator befindet.

Bei Einfang eines thermischen Neutrons wird der Targetkern durch die freiwerdende Bindungsenergie angeregt. Als Abregungsmechanismus existiert bei fissilen Kernen neben der γ -Emission die Möglichkeit der Kernspaltung. Die



Abbildung 3.2: Die Fokalebene des Massenseparators Lohengrin für ein Punkttarget.

Spaltprodukte gehen durch Neutronenabdampfung sowie γ - und β -Zerfall in eine stabile Konfiguration über. Da sich die Targetkerne vor der Spaltung in Ruhe befanden, bewegen sich im binären Fall vor prompter Neutronenabdampfung die beiden Spaltfragmente exakt in entgegengesetzter Richtung. Bei ternärer Spaltung bewegen sich die Fragmente nur näherungsweise entgegengesetzt auseinander, wobei das ternäre Teilchen einen mittleren Winkel von ca. 80° bis 90° mit dem leichten Fragment einschließt. Da nur ein kleiner Raumwinkel vom Target aus gesehen durch den Massenseparator Lohengrin ausgenutzt werden kann (etwa 10^{-5} [Mol 77]), wird jeweils nur ein Spaltprodukt detektiert. Die Flugzeit durch das Spektrometer beträgt ungefähr $2\,\mu s$ und ist damit kleiner als die kleinsten Halbwertszeiten für den nachfolgenden β -Zerfall der zu messenden Teilchen. Allerdings ist diese Zeit sehr lang im Vergleich zu den Neutronenemissionszeiten von $t_{\rm n} \leq 10^{-14}$ und auch den Gammaemissionszeiten von $t_{\gamma} \leq 10^{-12}$. Der Massenseparator erfaßt somit Spaltfragmente nach Abdampfung prompter Neutronen und nach Abgabe des überwiegenden Teils ihrer inneren Anregungsenergie (primäre γ -Strahlung), aber noch vor derem eventuellen β -Zerfall. Die Ablenkung der Spaltprodukte im Massenspektrometer Lohengrin erfolgt im homogenen, magnetischen Feld in horizontaler Richtung, im elektrischen Feld in vertikaler Richtung. Die Felder stehen senkrecht zur Fortbewegungsrichtung der Teilchen. Das magnetische Feld selektiert die Teilchen gemäß ihrem Verhältnis Impuls zu Ladung $\frac{p}{a}$, das nachfolgende elektrische Feld gemäß ihrem Verhältnis kinetische Energie zu Ladung $\frac{E_{\rm kin}}{a}$. Die Abbildung aufgrund der Kombination dieser Felder entspricht dem eines Thomsonschen Parabelspektrographen, und ergibt insgesamt eine Ablenkung auf Parabeln mit konstantem Verhältnis von Masse zu Ladung $\frac{m}{a}$. In Abbildung 3.2 ist die Fokalebene des Massenseparators Lohengrin von der experimentellen Seite aus zu sehen. Durch den Austrittsspalt wird ein 72 cm langer Abschnitt einer $\frac{m}{q}$ -Parabel herausgeschnitten, der in guter Näherung ein Geradenstück darstellt. Dieser Austrittsspalt bzw. dieses Geradenstück steht unter einem Winkel von 44° relativ zur Horizontalebene. Die Energiedispersion des Massenseparators beträgt entlang einer Parabel 7,2 cm pro Prozent Energieunterschied, d.h. es gelangen durch den 72 cm langen Austrittsspalt des Spektrometers Spaltprodukte innerhalb eines Energieintervalls von $\pm 5\%$ mit dem eingestellten $E_{\rm kin}$ -Wert als Schwerpunkt. Die Massendispersion senkrecht zu einer Parabel beträgt 3,24 cm pro Prozent Massenunterschied.

Falls von der Annahme eines Punkttargets ausgegangen wird, besitzen alle Spaltprodukte, die sich auf einem Punkt einer $\frac{m}{q}$ -Parabel befinden, die gleiche Geschwindigkeit bzw. das gleiche $\frac{E_{kin}}{q}$ -Verhältnis. Je weiter man sich auf einer Parabel dem Ursprung nähert, desto größer wird die Geschwindigkeit bzw. das $\frac{E_{kin}}{q}$ -Verhältnis der Teilchen. Bei einem ausgedehnten Target werden die Teilchen mit gleicher Geschwindigkeit nicht mehr auf einen Punkt, sondern auf eine Fläche, welche dem Target entspricht, abgebildet. Das Target wird durch den Separator etwa im Verhältnis 1:1 abgebildet. Dies bedeutet, daß auf einem Punkt einer Parabel Spaltprodukte mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten vorkommen können, je nach Ausdehnung des Targets.

In der Praxis werden die $\frac{m}{q}$ - und $\frac{E_{\rm kin}}{q}$ -Verhältnisse der zu messenden Teilchen vorgegeben. Die einzustellenden Felder des Massenseparators werden dann unter Berücksichtigung dieser vorgegebenen Größen berechnet. Da sich die Ionen im Magnetfeld aufgrund der Lorentzkraft auf einer Kreisbahn mit Radius $\rho_{\rm mag}$ bewegen, besitzen sie für die Zentralbahn die Bewegungsgleichung:

$$\frac{m \cdot \boldsymbol{v}^2}{\rho_{\text{mag}}} = q \cdot (\boldsymbol{v} \times \boldsymbol{B})$$

mit m : Masse des Ions v : Geschwindigkeit des Ions q : Ionenladung B : magn. Induktion

Da die magnetische Induktion senkrecht zur Teilchengeschwindigkeit steht, gilt:

$$\frac{m \cdot v^2}{\rho_{\text{mag}}} = q \cdot v \cdot B$$
$$\iff \qquad B = \frac{1}{\rho_{\text{mag}}} \cdot \frac{m \cdot v}{q} = \frac{1}{\rho_{\text{mag}}} \cdot \frac{p}{q}$$

Die Spaltprodukte werden im Magnetfeld nach ihrem $\frac{p}{q}$ -Verhältnis separiert.

Für die Bewegungsgleichung der Ionen auf der Zentralbahn des Kondensators gilt:

$$\frac{m \cdot v^2}{\rho_{\rm el}} = q \cdot E$$

$$\iff \qquad E = \frac{2}{\rho_{\rm el}} \cdot \frac{E_{\rm kin}}{q} \tag{3.1}$$

 mit

 $\rho_{\rm el}$: Krümmungsradius im elektr. Feld E: Betrag der elektr. Feldstärke

Die Spaltprodukte werden im elektrischen Feld nach ihrem $\frac{E_{\text{kin}}}{q}$ -Verhältnis separiert. Die Kombination beider Felder ergibt eine Selektierung nach ihrem $\frac{m}{q}$ -Verhältnis und ihrer Geschwindigkeit:

$$\frac{m}{q} = \frac{\rho_{\text{mag}}^2}{\rho_{\text{el}} \cdot \frac{B^2}{E}}$$

$$v = \frac{\rho_{\text{el}}}{\rho_{\text{mag}} \cdot \frac{E}{B}}$$
(3.2)

Der Zylinderkondensator läßt sich näherungsweise als Plattenkondensator betrachten. Unter dieser Annahme gilt für die elektrische Feldstärke E = U/d. Der Abstand zwischen den Kondensatorplatten wird mit d bezeichnet. Für das einzustellende B-Feld und die Spannung U erhält man aus Gleichung 3.1 und 3.2:

$$B = \sqrt{\chi \cdot U \cdot \frac{m}{q}}$$
 und $U = \frac{1}{\phi} \cdot \frac{E_{\text{kin}}}{q}$

Wenn für die Einheiten der magnetischen Induktion Gauß, der Spannung kV, der Masse amu, der Ionenladung die Elementarladung e^+ und der kinetischen Energie MeV verwendet wird, ergibt sich für die Konstante $\chi = 1209,17 \text{ m}^{-2}$ und $\phi = 0,00933$. Diese Konstanten hängen prinzipiell nur von den geometrischen Größen ρ_{mag} , ρ_{el} und d ab. In der Praxis ändert sich χ unter anderem aufgrund von Hystereseeigenschaften des Magneten und muß experimentell bestimmt werden (siehe Abschnitt 3.7).

Der sinnvollerweise auszumessende Energiebereich der ternären Teilchen liegt etwa zwischen 10 MeV und 40 MeV. Die Teilchengeschwindigkeiten liegen somit zwischen $1 \cdot 10^7$ m/s und $3 \cdot 10^7$ m/s. Dies bedeutet eine Geschwindigkeit der ternären Teilchen von bis zu 0,1c. Die relativistischen Massenänderungen sind daher bei den Einstellungen der Felder nicht mehr zu vernachlässigen. Für die einzustellende Spannung am Kondensator $U_{\rm rel}$ gilt aufgrund des relativistischen Energiesatzes:

$$U_{\rm rel} = \frac{E_{\rm kin}}{q} \cdot \frac{1}{\phi \cdot (1 + \frac{1}{4} \cdot \frac{v^2}{c^2} + \ldots)}$$
(3.3)

Für die einzustellende magnetische Induktion $B_{\rm rel}$ ergibt sich relativistisch gerechnet:

$$B_{\rm rel} = \sqrt{\chi \cdot U_{\rm rel} \cdot \frac{m_{\rm rel}}{q}}$$

Bei Spaltfragmenten entspricht die relativistische Massenzunahme etwa dem negativen Massenexzess. Dies hat zur Folge, daß in sehr guter Näherung m = A bei der Berechnung der Felder angesetzt werden kann. Dies gilt aber nicht für leichte Teilchen, da sich die relativistische Massenkorrektur und der positive Massenexzess zu einem nicht zu vernachlässigenden Fehler addieren. Für das α -Teilchen mit einer Energie von 10 MeV und $q = 2e^+$ erhält man beim Vergleich zwischen nichtrelativistischer und relativistischer Rechnung:

	$U \ / \ \mathrm{KV}$	$B \ / \ { m Gau} $
${ m nichtrelativistisch}$	$535,\!91$	$1138,\!64$
${ m relativistisch}$	$535,\!19$	$1139,\!40$
Änderung absolut	0,72	0,76
Änderung prozentual	$0,\!13$	0,07

Der besseren Übersicht halber wird im folgenden die Masse (in amu) durch die Nukleonenzahl A ersetzt, auch wenn die Felderberechnungen mittels der relativistisch bestimmten Masse $m_{\rm rel}$ erfolgten.

In den folgenden Tabellen sind einige charakteristische Daten des Massenseparators Lohengrin zusammengefaßt.

Maximale Quellfläche	$8{\cdot}75\mathrm{mm^2}$
Abstand Quelle – Magnet	8 m
Maximale Eintrittsöffnung	$80{\cdot}320\mathrm{mm}^2$
Ablenkwinkel im Magnetfeld	45°
Ablenkradius im Magnetfeld	4 m
Einfallswinkel des Hauptstrahls auf	
der Eintrittsseite des Magneten	$0^{\circ} (\pm 5^{\circ} \text{ justierbar})$
Ausfallswinkel des Hauptstrahls auf	
der Austrittsseite des Magneten	$0^{\circ} (\pm 5^{\circ} \text{ justierbar})$
Abstand Magnet – Kondensator	$2,\!31\mathrm{m}$
Ablenkwinkel im elektrischen Feld	$35{,}35^{\circ}$
Ablenkradius im elektrischen Feld	$5,6~\mathrm{m}$
Abstand Kondensator – Fokalebene	$6,24~\mathrm{m}$
Gesamtlänge des Hauptstrahls	$23,1~\mathrm{m}$
Länge des Austrittsspaltes	$0,72~{ m m}$
Maximale Breite des Austrittsspaltes	$18\mathrm{mm}$
Vergrößerung senkrecht zur Parabel	1,03
Vergrößerung in Richtung der Parabel	0,72
Massendispersion für 1% Massenunterschied	$32\mathrm{mm}$
Energiedispersion für 1% Energieunterschied	$72\mathrm{mm}$

Tabelle 3.1: Technische Daten des Massenseparators Lohengrin [Mol 77].

Polschuhabstand	$250\mathrm{mm}$
Polschuhfläche	$3,\!30~\mathrm{m^2}$
Feldhomogenität	10^{-4}
Anzahl der Spulenwindungen	2×196
Gesamtwiderstand	$1{,}1\Omega$
Stromstärke für 0,25 T	$140 \mathrm{A}$
zeitl. Stabilität	$2{\cdot}10^{-5}/$ Std.
Temperaturstabilität	$10^{-5}/^{\circ}\mathrm{C}$
Induktivität	2,3 Henry
Gesamtgewicht	ca. 40 t

Tabelle 3.2: Technische Daten des Ablenkmagneten [Mol 77].

Elektrodenabstand	$300\mathrm{mm}$
Oberfläche einer Elektrode	$4,4~\mathrm{m}^2$
Feldhomogenität	10^{-4}
Innenwiderstand	$3710 \ \mathrm{M}\Omega$
Strom im Messbetrieb	$< 10 \mu A$
Messwiderstand	$100~{ m k}\Omega$
zeitl. Stabilität	$2 \cdot 10^{-5}$ / Std.
Temperaturstabilität	$10^{-5} / ^{\circ} C$

Tabelle 3.3: Technische Daten des Ablenkkondensators [Mol 77].


Lohengrinparabel

Abbildung 3.3: Schematische Zeichnung des RED-Magneten.

3.4 Der RED-Magnet

Für viele Anwendungsfälle ist die Energiedispersion des Separators zu groß. Um die Energiedispersion des Massenspektrometers rückgängig zu machen, kann hinter dem Massenseparator Lohengrin noch ein zusätzlicher Magnet (siehe Abbildung 3.3) installiert werden. Dieser RED-Magnet (reverse energy dispersion magnet) fokussiert einen 40 cm langen Ausschnitt der Lohengrinparabel auf einen Punkt. Dieser fokussierte Ausschnitt der Parabel entspricht einem Energieintervall von $\pm 2,8\%$ bzgl. der Energie des Hauptstrahls eines Teilchens. Im Fokus hinter dem RED-Magneten besitzen alle Spaltprodukte das gleiche A/q-Verhältnis und liegen innerhalb eines Energieintervalls von $\pm 2,8\%$ bzgl. des für sie eingestellten Energiewertes.

Alle auf einen 40 cm langen Parabelabschnitt abgebildeten Spaltprodukte lassen sich mit einer Ionisationskammer nachweisen, die in den Fokus des Magneten gestellt wird. Dabei ist an der Kammer ein Eintrittsfenster mit einem Durchmesser von wenigen Millimetern ausreichend. Um die gleiche Zählrate ohne zusätzlichen Magneten zu erhalten, müßte die Ionisationskammer ein 40 cm langes Eintrittsfenster besitzen. Dies ist technisch nicht realisierbar. Es lassen sich ohne Magnet mit den kleinen realisierbaren Eintrittsfenstern nur Spaltprodukte nachweisen, die sich auf einigen wenigen Zentimetern entlang der Parabel befinden. Die Verwendung des RED-Magneten führt damit zu einer Erhöhung der Zählrate um einen Faktor 7 pro Längeneinheit längs der Parabel [Fio 91]. Eine vollständige Fokussierung des im Prinzip zugänglichen 72 cm langen Parabelausschnittes am Ausgang des Massenspektrometers ist leider nicht möglich. Der große Krümmungsradius und die große Masse des hierfür erforderlichen Magneten (ca. 20 t) sind mit den örtlichen Gegebenheiten nicht vereinbar.

Für das einzustellende magnetische Feld des RED-Magneten gilt:

$$B_{\rm RED} = \kappa \cdot B_{\rm Loh}$$

Die Konstante κ hängt theoretisch nur von geometrischen Größen des Magneten ab. In der Praxis ändert sie sich aber unter anderem aufgrund von Hystereseeigenschaften des Magneten und muß analog wie χ ständig experimentell bestimmt werden (siehe Abschnitt 3.7). B_{Loh} bezeichnet die magnetische Induktion des Lohengrinmagneten. In Tabelle 3.4 sind einige technische Eigenschaften des RED-Magneten aufgeführt.

Steifigkeit	$0,9 \mathrm{T}\cdot\mathrm{m}$
Ablenkwinkel	65°
Ablenkradius	$600\mathrm{mm}$
B_{\max}	$1,5\mathrm{T}$
Abstand zwischen Polschuhen	$50 \mathrm{mm}$
Profil der Polschuhe	näherungsweise Rogowski
Querschnitt der Spulen	$150.76 \mathrm{~mm^2}$
elektrischer Widerstand der Spulen	$0,\!0764\Omega$
maximale elektrische Leistung	$17,5\mathrm{kW}$
Gewicht	ca. 6125 kg
Abstand Kondensator zu RED-Magnet	$5,24\mathrm{m}$
Abstand RED–Magnet zu Fokus	$1,05\mathrm{m}$
Gesamte Flugstrecke Lohengrin + RED–Magnet	$23,15~\mathrm{m}$

Tabelle 3.4: Technische Daten des RED-Magneten [Fio 91].

Aufgrund der Erhöhung der Zählrate im Experiment lassen sich seltene Phänomene wie symmetrische Spaltung, stark asymmetrische Spaltung oder ternäre Spaltung untersuchen. Der RED-Magnet wurde auf Initiative des Physikalischen Instituts der Universität Tübingen als Erweiterung für den Massen-



Abbildung 3.4: Schematische Zeichnung des RED-Magneten und der $\Delta E - E_{\text{rest}}$ -Ionisationskammer.

separator Lohengrin beschafft und installiert. Motivation hierfür waren nicht zuletzt Untersuchungen zur ternären Spaltung, wie sie in der vorliegenden Arbeit durchgeführt wurden. Ein weiterer Vorteil bei der Benutzung des RED– Magneten ist eine effiziente Unterdrückung des Untergrundes, der von Streuereignissen herrührt. Dies ist insbesondere bei der Suche nach sehr seltenen Ereignissen wichtig.

3.5 Die Ionisationskammer

Zum Nachweis von Spaltprodukten beziehungsweise ternären geladenen Teilchen wurde eine $\Delta E - E_{\text{rest}}$ -Ionisationskammer verwendet [Hes 92]. Die gasgefüllte Kammer hat eine geteilte Anode und setzt sich daher aus zwei Teilen zusammen, die durch ein Zwischengitter voneinander getrennt sind (siehe Abbildung 3.4). Der vordere Teil dient zur Bestimmung des Energieverlustes ΔE der Ionen, der hintere zur Bestimmung der Restenergie E_{rest} . Damit folgt für die Gesamtenergie $E_{\text{tot}} = \Delta E + E_{\text{rest}}$. Die Ionisationskammer wird hinter dem RED-Magneten aufgestellt. Die Kammer hat nicht nur die Aufgabe, die Anzahl der analysierten Ionen zu messen. Vor allem soll deren Kernladung (und in speziellen Fällen auch deren Masse) bestimmt werden.

Zur Festlegung der Kernladung von Spaltprodukten wird die Eigenschaft ausgenützt, daß die Wechselwirkungen zwischen Teilchen, die eine Materieschicht durchlaufen, und den Atomen dieser Schicht von der Geschwindigkeit v und Ionenladung Q abhängen. Die Wahrscheinlichkeit, mit der diese Teilchen eine spezielle Ionenladung Q in der Materieschicht besitzen, hängt wiederum von ihrer Kernladung Z ab (siehe Abschnitt 4.3). Da die Wechselwirkungen zu einem Energieverlust der die Materieschicht durchlaufenden Spaltprodukte führen, lassen sich aus diesen Energieverlusten ihre Kernladungen bestimmen. Die Energieverluste sind proportional zu Q^2/v^2 , wobei die Ionenladung Q eine komplizierte Funktion der Kernladung Z und Geschwindigkeit v des Ions ist. Eine optimale Kernladungsauflösung erhält man, falls die zu untersuchenden Teilchen etwa 60 % ihrer gesamten kinetischen Energie in der Materieschicht verlieren. Relevante Wechselwirkungen sind inelastische Stöße an den Elektronen der Atome der Materieschicht (elektronischer Energieverlust) sowie die elastische Streuung an diesen Atomen, die dadurch beschleunigt werden (nuklearer Energieverlust).

Tritt nun ein vom Massenseparator Lohengrin kommendes Ion in die Ionisationskammer ein, so findet durch die oben beschriebenen Wechselwirkungen mit den Gasatomen der Kammer eine kontinuierliche Umladung und Abbremsung des Ions statt. Bei den inelastischen Stößen mit den Elektronen der Gasatome werden Elektron-Ion-Paare gebildet, deren Anzahl unter anderen von der Ionenladungsverteilung des Ions (siehe Abschnitt 4.3), und damit von der Kernladung des Ions, abhängt. Aufgrund des anliegenden elektrischen Feldes wirkt auf die Elektronen eine Kraft in Richtung der Anode sowie auf die Ionen eine Kraft in Richtung der Kathode. Wenn die Elektronen das Frischgitter passieren, welches die Anode abschirmt, wird ein Signal induziert das von der nachfolgenden Elektronik weiterverarbeitet wird. Bei der elastischen Streuung übertragen die Ionen auf die Atome des Gases Energie und erleiden einen nuklearen Energieverlust. Die angestoßenen Atome treten ihrerseits in Wechselwirkung mit den Elektronen der Gasatome und können ebenfalls Elektron-Ion-Paare erzeugen. Dieser elastische Prozeß findet hauptsächlich bei kleinen Energien und großen Massen der Ionen statt. Aus diesem Grunde tritt der nukleare Energieverlust der Ionen bevorzugt im E_{rest} -Teil der Ionisationskammer auf.

Der elektronische Anteil des Signals des ΔE -Teils der Kammer hängt von der Geschwindigkeit und Ionenladung Q der Ionen in der Ionisationskammer ab. Dabei ist die Ionenladung Q ihrerseits eine Funktion der Kernladung und der Ge-

schwindigkeit des Ions. Falls zusätzlich ein nuklearer Energieverlust im ΔE -Teil stattfindet, erhält man ein erhöhtes Signal, welches die Messung der Kernladung verfälscht. Das Signal des E_{rest} -Teils, in dem die Ionen vollständig gestoppt werden, ist ein Maß für ihre verbleibende Restenergie. Die gesamte kinetische Energie erhält man durch Addition der beiden Anodensignale.

Bei einer festen A/q- und $E_{\rm kin}/q$ -Einstellung des Massenseparators Lohengrin verlassen den Separator im allgemeinen Teilchen mit unterschiedlicher Masse A und wegen den konstanten Verhältnissen somit auch unterschiedlicher Ionenladung q sowie unterschiedlicher kinetischer Energie $E_{\rm kin}$. Aufgrund der beiden festen Einstellungen gilt auch für alle den Separator verlassenden Teilchen $A/E_{\rm kin} = {\rm const.}$ Diese Teilchen gelangen in die Ionisationskammer. Die Massenzahl der Teilchen läßt sich anhand des bekannten $A/E_{\rm kin}$ -Verhältnisses und der Summe aus den Ionisationskammersignalen des ΔE - und E_{rest} -Teils der Kammer, welches der gesamten kinetischen Energie entspricht, bestimmen. Die Kernladung erhält man aus dem ΔE -Signal. Dieses Signal ist nur von der Kernladung und der Geschwindigkeit, mit der die Teilchen in die Ionisationskammer gelangen, abhängig. Von der Ionenladung q, mit der die Ionen in die Kammer gelangen, ist das ΔE -Signal unabhängig, während es aber von der sich durch die Wechselwirkungen mit den Gasatomen verändernden Ionenladung Q des Ions in der Ionisationskammer abhängig ist. Da die Geschwindigkeit durch die vorgenommenen Einstellungen am Lohengrin gegeben ist, läßt sich die Kernladung des in die Ionisationskammer einlaufenden Teilchens aus dem ΔE -Signal bestimmen.

Die Ionisationskammer wurde mit Isobutan (C₄H₁₀) betrieben. Über den Gasdruck kann die mittlere Weglänge der Ionen variiert werden. Die Ionen müssen einerseits in der Kammer vollständig gestoppt werden, damit ihre gesamte kinetische Energie E_{tot} bestimmt werden kann. Andererseits dürfen sie nicht bereits im ΔE -Teil ihre gesamte Energie abgeben, da sonst die Kernladungsauflösung verloren geht. Der Gasdruck wurde in Abhängigkeit der Ionen und ihrer kinetischen Energie zwischen 35 mbar und 140 mbar variiert. Um die Energieauflösung der Kammer zu verbessern, wurde sie mit Gasdurchfluß betrieben. Das Eintrittsfenster bestand aus einer Polypropylenfolie mit einer Massenbelegung von ca. 60 μ g/cm². Die Anodenspannungen betrugen 900 V, am Frischgitter lag eine Spannung von 450 V und die Kathode wurde geerdet.



Abbildung 3.5: Schematische Zeichnung der Meßelektronik.

3.6 Die Meßelektronik

In Abbildung 3.5 ist schematisch der Aufbau der Meßelektronik dargestellt. Für jedes in die Ionisationskammer gelangende Ion wird ein ΔE - und $E_{\rm rest}$ -Anodensignal aufgenommen. Diese Signale werden mit ladungsempfindlichen Vorverstärkern (PA) und Hauptverstärkern (MA) verstärkt. Das ΔE -Signal wird aufgeteilt in zwei Signale, von denen das eine direkt einem Analog-Digital-Wandler (ADC) zugeführt wird und das andere in einen Summierer (Σ) gelangt. Das $E_{\rm rest}$ -Signal wird ebenfalls in den Summierer geleitet, so daß das summierte Signal der gesamten Energie des Ions in der Kammer entspricht. Dieses Signal gelangt schließlich in einen Analog-Digital-Wandler, und wird wie das ΔE -Signal dem Datenerfassungssystem zugeführt. Ein Ereignis wird nur vom Datenaufnahmesystem gespeichert, falls ΔE - und $E_{\rm tot}$ -Signal innerhalb einer bestimmten Zeitspanne (einige μ s) an den Eingängen der ADCs anliegen. Diese Koinzidenz wird vom Datenaufnahmesystem überprüft.

3.7 Bestimmung der Konstanten ϕ , χ und κ

Die ionenoptischen Konstanten des Massenseparators hängen theoretisch nur von geometrischen Größen ab. Nach Wartungsarbeiten insbesondere an den Kondensatorplatten müssen diese allerdings neu justiert werden. Dadurch kann sich die Konstante ϕ ändern und es ist erforderlich, sie neu zu bestimmen. Im Zeitraum zwischen solchen Justierarbeiten kann ϕ als konstant angesehen werden. Im Gegensatz dazu sind die Konstanten χ und κ aufgrund von z.B. Hystereseeigenschaften der Magnete über längere Zeiträume im allgemeinen nicht konstant. Insbesondere bei einem Targetwechsel kann sich χ verändern, da dazu ein Abschalten des Lohengrinmagneten notwendig ist. Die Konstante ϕ wurde aus einer früheren Messung übernommen, während die Konstanten χ und κ etwa alle zwei Tage während der Meßzeit neu bestimmt wurden.

3.7.1 Die Konstante ϕ

Zur Bestimmung der Konstanten ϕ wird ein kleiner ⁶Li–Fleck ($\phi \approx 1 \text{ mm}$) auf ein Target aufgebracht. Die thermischen Neutronen reagieren mit ⁶Li:

$$^{6}\text{Li} + n \longrightarrow t + \alpha$$

Die Tritonen und α -Teilchen werden mit einem Halbleiterzähler hinter dem Massenseparator nachgewiesen. Die Li-Reaktion wird wegen der sehr genauen Kenntnis der Massen, Geschwindigkeiten und kinetischen Energien der Tritonen und α -Teilchen verwendet. Aus dem Q-Wert der Reaktion, dem Impulserhaltungssatz und unter den Annahmen, daß die Geschwindigkeit des Neutrons nahezu Null sowie die Reaktionsprodukte nicht angeregt sind, erhält man für die kinetische Energie der Tritonen 2,727 MeV. Zur Bestimmung der Konstanten ϕ wird die Spannung U bestimmt, bei der die Intensität der Tritonen mit $q = 1 e^+$ maximal wird. Nach Gleichung 3.3 erhält man für die Konstante:

$$\phi = \frac{E_{\mathrm{kin}}}{U_{\mathrm{rel}}q} \cdot \frac{1}{\left(1 + \frac{1}{4}\frac{v^2}{c^2} + \cdots\right)}$$

Für ϕ ergab sich bei Messungen im März 1995 $\phi = 0,010133$ [Wös 95] und im Juni 1997 nach Arbeiten an der Hochspannungsversorgung $\phi = 0,0223$. Der enorme Sprung in der Konstanten ϕ ist darauf zurückzuführen, daß zwischenzeitlich die elektronische Anzeige der Spannung U auf willkürliche Einheiten umgestellt wurde.



Abbildung 3.6: Bestimmung der Konstanten χ . B_{alt} entspricht dem mittels altem χ_{alt} bestimmten Magnetfeld und B_{max} dem experimentell bestimmten Magnetfeld, mit dem die neue Konstante χ_{neu} berechnet wird.

3.7.2 Die Konstante χ

Um die Konstante χ zu erhalten, wird die Zählrate für ein bestimmtes Teilchen mit vorgegebener kinetischer Energie und Ionenladung bei Variation des Magnetfeldes gemessen. Zur Berechnung des Magnetfeldes für diese Einstellung wird zunächst der alte Wert χ_{alt} benützt. Man variiert das Magnetfeld in kleinen Schritten (ca. 0,25–0,50 Gauß) um den berechneten Wert B_{alt} und bestimmt jeweils die Zählrate des Teilchens. Die optimale Wahl des Magnetfeldes ist bei maximaler Zählrate erreicht. Falls das mit dem alten χ_{alt} berechnete Magnetfeld B_{alt} nicht mit dem Magnetfeld B_{max} bei maximaler Zählrate übereinstimmt, hat sich die Konstante verändert. Für das neue χ_{neu} gilt:

$$\chi_{\rm neu} = \frac{B_{\rm max}^2 q}{U_{\rm rel} m_{\rm rel}} = \chi_{\rm alt} \frac{B_{\rm max}^2}{B_{\rm alt}^2}$$
(3.4)

Mit der Variation des Magnetfeldes wird die Parabel A/q über den Austrittsspalt des Massenseparators Lohengrin verschoben. Falls die A/q-Parabel optimal im Austrittsspalt liegt und nicht seitlich abgeschnitten wird, erreicht die Zählrate ihren maximalen Wert. Für diesen " χ -scan" wird ein Teilchen mit hoher Zählrate ausgewählt, damit trotz kurzer Meßzeit der statistische Fehler klein bleibt. Im Falle der ²³³U-Messung wurde ⁶He mit einer kinetischen Energie von 10 MeV und Ionenladung $q = 1 e^+$ gewählt. In der ²³⁹Pu-Messung wurde das α -Teilchen mit einer kinetischen Energie von 9 MeV und $q = 2 e^+$ benützt. Bei der ²²⁹Th-Messung war es wegen der geringen Ausbeute von ternären Teilchen nicht möglich, diese für einen " χ -scan" zu nutzen. Aus diesem Grunde wurde das binäre Fragment A = 84 mit einer Energie $E_{\rm kin} = 84$ MeV und einer Ionenladung 21 e^+ gewählt. Der Nachteil bei Verwendung eines binären Fragments ist die gegenüber ternären Teilchen notwendige Veränderung der Verstärkung des Hauptverstärkers sowie des Druckes in der Ionisationskammer.

Abbildung 3.6 zeigt einen durchgeführten " χ -scan" am Beispiel der ²²⁹Th-Messung. Es wurde das Magnetfeld des Massenseparators Lohengrin in 0,5-Gauß-Schritten variiert und jeweils die Zählrate des Fragments A = 84 mit $E_{\rm kin} = 84$ MeV und $q = 21 e^+$ bestimmt. Das mit dem alten $\chi_{\rm alt}$ berechnete Magnetfeld $B_{\rm alt}$ fällt nicht mit dem Magnetfeld $B_{\rm max}$ des Maximums der Zählrate zusammen. Dies bedeutet, daß sich die Konstante χ geändert hat und nach Gleichung 3.4 neu bestimmt werden muß. Während der ²³³U-Messung im Mai 1996 variierte χ zwischen 1309,18 m⁻² und 1312,94 m⁻². Nach Arbeiten an der Hochspannungsversorgung änderte sich ϕ (siehe Abschnitt 3.7.1) und damit auch χ . Die Konstante χ nahm danach in der ²³⁹Pu-Messung Werte zwischen 2884,36 m⁻² und 2885,70 m⁻² und in der ²²⁹Th-Messung zwischen 2894,68 m⁻² und 2897,22 m⁻² an.

3.7.3 Die Konstante κ

Die Bestimmung der Konstanten κ erfolgt analog der Konstanten χ . Es wird das Magnetfeld des RED-Magneten variiert, während das Magnetfeld des Massenseparators Lohengrin konstant bleibt. Die Konstante κ hat sich geändert, falls das Magnetfeld beim Maximum der Zählrate nicht mit dem alten $\kappa_{\rm alt}$ berechneten Magnetfeld übereinstimmt. Das neue $\kappa_{\rm neu}$ erhält man mittels:

$$\kappa_{\rm neu} = \frac{B_{\rm RED,max}}{B_{\rm Loh}} = \frac{B_{\rm RED,max}}{B_{\rm RED,alt}} \kappa_{\rm alt}$$

 $B_{\text{RED,max}}$ bezeichnet das Magnetfeld des RED-Magneten, bei dem die Zählrate am größten ist, $B_{\text{RED,alt}}$ das mit der alten Konstanten κ_{alt} berechnete Magnetfeld des RED-Magneten und B_{Loh} das Magnetfeld des Lohengrinmagneten.



Abbildung 3.7: Bestimmung der Konstanten κ . $B_{\text{RED,alt}}$ entspricht dem mittels altem κ_{alt} bestimmten Magnetfeld, $B_{\text{RED,max}}$ dem experimentell bestimmten Magnetfeld, mittels dem die neue Konstante κ_{neu} berechnet wird.

Abbildung 3.7 zeigt einen durchgeführten " κ -scan" am Beispiel der ²²⁹Th-Messung. Das Magnetfeld des RED-Magneten wurde in 200-Gauß-Schritten variiert. Im Gegensatz zum " χ -scan" erhält man ein relativ breites Plateau, weshalb der Wert für κ während einer gesamten Meßzeit praktisch unverändert bleibt. Es ist allerdings wichtig darauf zu achten, daß $B_{\text{RED,alt}}$ nicht durch eine Änderung von κ an die Abbruchkante bei großen Magnetfeldern gelangt, da dort bereits kleine Änderungen von κ einen großen Intensitätsverlust zur Folge haben. Aus diesem Grunde wurde $B_{\text{RED,max}}$ nicht in die Mitte des Plateaus gesetzt, sondern etwas zu kleineren Magnetfeldern hin verschoben. Die Konstante κ bewegte sich bei der ²³³U-Messung zwischen 6,75 und 6,81 sowie bei den ²²⁹Th-Messungen zwischen 6,75 und 6,84. Während der ²³⁹Pu-Messung blieb κ konstant auf dem Wert 6,68.

Kapitel 4

Auswertung

4.1 Identifizierung der Nuklide

Die Spaltprodukte werden mit Hilfe einer $\Delta E - E_{\text{Rest}}$ -Ionisationskammer nachgewiesen. Für jedes registrierte Ereignis werden zwei Kanalnummern (von 0 bis 1023), welche der Signalhöhe des ΔE und $E_{\text{tot}} = \Delta E + E_{\text{Rest}}$ Signals entsprechen, aufgezeichnet (siehe Abschnitt 3.6).

Die ΔE -Kanalnummer ist ein Maß für den Energieverlust der Teilchen im ΔE -Teil der Ionisationskammer. Dieser Energieverlust ist abhängig von der Eintrittsgeschwindigkeit und Kernladung der Teilchen. Bei Kenntnis der Geschwindigkeit läßt sich aus ihr die Kernladung bestimmen. Falls die Teilchen in der Ionisationskammer gestoppt werden, ist ihre E_{tot} -Kanalnummer ein Maß für ihre Anfangsenergie.

Die in der Messung registrierten Kanalnummern sind in Abbildung 4.1 als zweidimensionaler Plot für die Einstellung $\frac{A}{q} = 3$ und $\frac{E_{kin}}{q} = 4$ des Massenseparators Lohengrin dargestellt. Auf der Abszisse sind die E_{tot} -Kanalnummern, auf der Ordinate die ΔE -Kanalnummern aufgetragen. Die einzelnen Nuklide sind gut voneinander getrennt. Auf den "vertikalen" Linien liegen Teilchen mit gleicher Massenzahl A und unterschiedlicher Kernladungszahl Z, auf den "horizontalen" Linien Teilchen mit gleicher Kernladungszahl und unterschiedlicher Massenzahl. Die Neigung der Linien mit A = const ist auf den Energieverlust im Eintrittsfenster der Ionisationskammer zurückzuführen. Der Energieverlust der Spaltprodukte im Eintrittsfenster steigt mit ihrer Kernladung an. Die Neigung der Linien mit Z = const kommt aufgrund der unterschiedlichen Energien und damit unterschiedlichen elektronischen Energieverluste der Teilchen im ΔE -Teil



Abbildung 4.1: $\Delta E - E_{tot}$ Scatterplot für die Einstellung $\frac{A}{q} = 3$ und $\frac{E_{kin}}{q} = 4$.

zustande.

Im folgenden wird die Bestimmung der Massen- und Kernladungszahl der Teilchen behandelt.

4.1.1 Identifizierung der Massen

Am Massenseparator Lohengrin werden mittels der Spannung am Kondensator und den magnetischen Induktionen der Magnete Spaltprodukte mit einem festen $\frac{A}{q}$ - und $\frac{E_{\text{kin}}}{q}$ -Verhältnis ausgewählt. Alle Teilchen, die in die Ionisationskammer gelangen, erfüllen diese beiden Verhältnisse.

Um eine Masse im Spektrum zu identifizieren, sind zwei Einstellungen erforderlich. Neben dem interessierendem $\frac{A}{q}$ - und $\frac{E_{\rm kin}}{q}$ -Verhältnis muß noch ein weiteres Verhältnis ausgewählt werden, bei dem jedoch nur die Ionenladung qverändert wird. Die gesuchte Masse wird sich bei beiden Einstellungen aufgrund ihrer gleichen Energie bei der gleichen $E_{\rm tot}$ -Kanalnummer befinden. Alle anderen Massen kommen aufgrund des geänderten $\frac{A}{q}$ - und $\frac{E_{\rm kin}}{q}$ -Verhältnisses entweder überhaupt nicht mehr vor oder besitzen eine andere $E_{\rm tot}$ -Kanalnummer.

Nach der Identifizierung einer Massenlinie im Spektrum lassen sich auch alle

weiteren zuordnen. Da die Massenzahl A und die Ionenladung q nur ganzzahlige Werte annehmen können, haben die aufeinanderfolgenden theoretisch möglichen Massenlinien immer den gleichen Energieunterschied. Die Differenz der E_{tot} -Kanalnummern zwischen diesen Linien ist deshalb annähernd gleich. In Abbildung 4.1 haben die aufeinanderfolgenden Massenlinien aufgrund des gewählten Verhältnisses $\frac{E_{kin}}{q} = 4$ einen Abstand von 4 MeV und sind wegen des Verhältnisses $\frac{A}{q} = 3$ Vielfache von drei. Durch einfaches Abzählen lassen sich die Massenlinien den Massenzahlen zuordnen.

4.1.2 Identifizierung der Kernladung

Alle auf einer Massenlinie liegenden Teilchen besitzen die gleiche Massenzahl A. Diese Nuklide können jedoch noch eine unterschiedliche Kernladung Z aufweisen. Die Unterscheidung nach der Kernladung erfolgt aufgrund des unterschiedlichen Energieverlustes im ΔE -Teil der Ionisationskammer. Nach [Gön 89] gilt $\Delta \mathbf{E} \sim Z^{1/6} \cdot v,$ d.h. der Energieverlust ist umso größer, je größer die Kernladung ist. Die ΔE -Kanalnummern steigen mit der Kernladung der Nuklide an. Desweiteren kann die Ionenladung q eines Nuklids nicht größer als seine Kernladung sein. Somit muß für alle Nuklide auf einer Massenlinie $Z \ge q$ gelten, wobei sich die Ionenladung aus dem eingestellten $\frac{A}{q}$ -Verhältnis ergibt. Die endgültige Zuordnung erfolgt durch eine Einstellung, bei der viele unterschiedliche Nuklide beobachtet werden können (siehe Abbildung 4.1). Mit den zusätzlichen Kenntnissen, daß in der Spaltung fast nur neutronenreiche Kerne als primäre Spaltteilchen entstehen und die stabilen Teilchen ¹²C und ¹⁸O bei niedrigen Energien durch "Ionensputtern" deutlich am häufigsten vorkommen, läßt sich eine Zuordung leicht durchführen. Dabei soll mit "Ionensputtern" die Beobachtung bezeichnet werden, daß Verunreinigungen des Targets durch stabile Nuklide wie z.B. $^{12}\mathrm{C}$ oder $^{18}\mathrm{O}$ von den Spaltfragmenten ähnlich wie bei einer Ionensputterquelle herausgeschlagen und im Separator Lohengrin nachgewiesen werden. Das Rutherfordstreugesetz führt zu einer charakteristischen Energieverteilung der Ausbeute, die von niedrigen zu hohen Energien hin abnimmt.

Anhand der ΔE -Kanalnummern kann man bei den weiteren Spektren auf die Kernladung schließen. Bei einer Druckänderung des Gases in der Ionisationskammer muß die Zuordnung der ΔE -Kanalnummern zu den Kernladungen neu durchgeführt werden.

4.1.3 Parasitäre Massen

Als parasitäre Massen werden Nuklide bezeichnet, die in den Spektren nachgewiesen werden, obwohl ihr $\frac{A}{q}$ -Verhältnis leicht vom eingestellten Wert abweicht. Dies kann vorkommen, falls ein $\frac{A}{q}$ -Verhältnis mit annähernd gleichem Wert wie dem eingestellten existiert. Da der Austrittsspalt des Lohengrin eine Breite von 18 mm besitzt, können am Rand des Spaltes noch Parabelausschnitte der benachbarten $\frac{A}{q}$ -Parabeln in den RED-Magneten und somit in die Ionisationskammer gelangen.

Beim Auftreten einer Massenlinie im Spektrum mit einer Energie (E_{tot} -Kanalnummer), die nicht dem eingestelltem $\frac{A}{q}$ - und $\frac{E_{kin}}{q}$ -Verhältnis entspricht, muß es sich um eine parasitäre handeln. Durch Betrachtung der möglichen $\frac{A}{q}$ -Werte in der Umgebung des eingestellten Wertes und der beobachteten Energie kann auf die Masse geschlossen werden. Da nicht bekannt ist, ob die Parabelausschnitte der parasitären Massen vollständig durch den Austrittsspalt gelangen oder zu einem gewissen Bruchteil abgeschnitten werden, können sie allerdings nicht zur Auswertung herangezogen werden.

4.2 Normierungen und Korrekturen

Aus dem Experiment ergibt sich bei der Auswertung der $\Delta E-E$ -Spektren eine beobachtete Ereignisanzahl $Y(A,Z,E_{\rm kin},q,t,\Delta t,\Delta E_{\rm kin})$. Diese Anzahl der Teilchen hängt von der Massenzahl A, Kernladungszahl Z, kinetischen Energie $E_{\rm kin}$, Ionenladung q, dem Zeitpunkt der Messung t, der Dauer der Messung Δt und dem beobachteten Energieintervall $\Delta E_{\rm kin}$ ab. Um aus der Anzahl der Ereignisse die Ausbeute zu bestimmen, sind mehrere Normierungen und Korrekturen erforderlich.

4.2.1 Normierung der Energie

Durch den Austrittsspalt des Massenseparators Lohengrin gelangt ein 72 cm langer Parabelausschnitt, auf dem alle Teilchen das gleiche $\frac{A}{q}$ -Verhältnis besitzen. Für ein ausgewähltes Teilchen variiert die Energie auf diesem Ausschnitt um $\pm 5,0\%$ bezüglich des eingestellten Wertes. Bei einem Prozent Energieunterschied beträgt die Energiedispersion 72 mm (siehe Abschnitt 3.3). In dieser Messung wurden 33,85 cm des Austrittsspaltes durch den RED-Magneten in die Ionisationskammer fokussiert, dies entspricht einem Energieintervall $\Delta E_{\rm kin}$ von 4,70 % bezüglich der eingestellten Energie. Die Größe der Energieintervalle in MeV, die im Fenster der Ionisationskammer abgebildet werden, sind demnach nicht immer gleich groß, sondern abhängig von der eingestellten Energie. Um dies zu berücksichtigen, muß eine Normierung bezüglich eines einheitlichen Energieintervalls durchgeführt werden. Die Ausbeute wird auf ein Energieintervall von 1 MeV bezogen. Somit gilt für die bezüglich der Energie normierten Ereignisse:

 $Y(A,Z,E_{\rm kin},q,t,\Delta t) = \frac{Y(A,Z,E_{\rm kin},q,t,\Delta t,\Delta E_{\rm kin})}{\Delta E_{\rm kin}}$

m	1	t

t $Y(A,Z,E_{kin},q,t,\Delta t)$: Ereignisse pro MeV $Y(A,Z,E_{kin},q,t,\Delta t,\Delta E_{kin})$: beobachtete Ereignisse ΔE_{kin} : beobachtetes Energieintervall $= \frac{E_{kin}}{100} \cdot 4,7$

4.2.2 Korrektur der Energie

Die ternären Teilchen werden durch Kernspaltung an einer beliebigen Stelle im Target gebildet. Von dort aus durchqueren sie das Target und gelangen zur $0.25 \,\mu$ m dicken Nickel-Abdeckfolie, die fast alle benützten Targets gegen das "Absputtern" von Targetmaterial besaßen. Diese Nickelfolie müssen die ternären Teilchen noch vollständig durchqueren, bevor sie in den Massenseparator Lohengrin gelangen. Im Separator werden die Teilchen unter anderem nach ihrer Energie selektiert. Da sie beim Durchqueren des Targets und der Nickel-Abdeckfolie Energie verlieren, ist ihre Energie im Parabelspektrograph kleiner als ihre ursprüngliche. Um die Energie zu erhalten, mit der sie entstanden sind, muß der Energieverlust im Target und in der Nickelfolie hinzuaddiert werden.

Bei der Bestimmung des Energieverlustes wurde von der Annahme ausgegangen, daß alle Teilchen in der Mitte des Targets entstehen. In Tabelle 4.1 sind einige Energieverluste ternärer Teilchen am Beispiel des verwendeten ²³³U-Targets (Dicke 0,19 μ m) aufgeführt. Sie wurden mittels des von J.F. Ziegler entwickelten Programms TRIM, das den Energieverlust von Ionen auf der Basis einer

	$E_{\rm mess}/$	$\Delta E_{\rm Uran}$ /	$\Delta E_{\rm Nickel}$ /	$\Delta E_{\rm ges}$ /	$E_{\rm org}$ /
	MeV	${ m MeV}$	${ m MeV}$	MeV	MeV
	$10,\!00$	$0,\!28$	$0,\!38$	$0,\!66$	$10,\!66$
$^{10}\mathrm{Be}$	$15,\!00$	0,25	$0,\!32$	0,57	$15,\!57$
	$20,\!00$	$0,\!22$	$0,\!29$	0,51	20,51
14 C	$15,\!00$	$0,\!54$	$0,\!71$	1,25	16,25
0	$20,\!00$	$0,\!51$	$0,\!64$	$1,\!15$	$21,\!15$
20 0	$20,\!00$	0,84	1,11	$1,\!95$	21,95
0	30,00	0,79	1,01	1,80	$31,\!80$

Tabelle 4.1: Energieverluste einiger ternärer Teilchen. $E_{\rm mess}$ ist die gemessene Energie der Teilchen hinter dem Parabelspektrometer, $\Delta E_{\rm Uran}$ und $\Delta E_{\rm Nickel}$ der Energieverlust im Urantarget bzw. der Nickelfolie sowie $\Delta E_{\rm ges}$ der gesamte Energieverlust. $E_{\rm org}$ ist die Energie der ternären Teilchen bei ihrer Entstehung.

Monte-Carlo-Simulation berechnet [Zie 80, Zie 85], bestimmt. In der Nickelfolie verlieren die Teilchen die meiste Energie (ca. 55% bis 60% ihres gesamten Energieverlustes). Mit steigender Energie sinkt der Energieverlust der ternären Teilchen, während er mit ihrer Kernladung steigt. Den gesamten Energieverlust erhält man durch Addition der Verluste im Target und der Nickel-Abdeckfolie.

4.2.3 Normierung der Meßdauer

Da die meisten Messungen eine unterschiedliche Meßdauer aufweisen, wird die Anzahl der Ereignisse bezüglich eines einheitlichen Zeitintervalls angegeben. In dieser Arbeit wird für das Zeitintervall eine Stunde gewählt. Somit gilt für die Normierung der Meßdauer:

$$Y(A, Z, E_{\min}, q, t) = \frac{Y(A, Z, E_{\min}, q, t, \Delta t)}{\Delta t}$$

mit
$$Y(A,Z,E_{kin},q,t)$$
 : Ereignisse pro MeV und Stunde
 $Y(A,Z,E_{kin},q,t,\Delta t)$: Ereignisse pro MeV
 Δt : Meßdauer in Stunden

4.2.4 Abbrandkorrektur

Durch die hohe Spaltrate im Target nimmt der Vorrat an spaltbarem Material in der Quelle ab. Je später eine Messung stattfindet, desto weniger ²²⁹Th-,²³³Ubzw. ²³⁹Pu-Targetkerne sind vorhanden. Durch das "Abbrennen" nehmen die Intensitäten der ternären Teilchen mit der Zeit ab. Deshalb ist es entscheidend, zu welchem Zeitpunkt eine Messung durchgeführt wird. Um die Ereignisse bezüglich des Abbrandes zu korrigieren, muß der zeitliche Verlauf der Abnahme der Targetkerne bestimmt werden. Dies wird durch mehrere identische, über die gesamte Experimentdauer verteilte Messungen des gleichen Teilchens erreicht. Man erhält damit die zeitliche Abnahme der Intensität des gemessenen Teilchens, die Abbrandkurve. Diese Kurve spiegelt den zeitlichen Verlauf der Abnahme der Targetkerne wider. Die Abnahme erfolgt nach einem exponentiellen Zerfallsgesetz mit der Zerfallskonstanten $\lambda = \sigma_{\rm R}\phi$:

$$Y(A, Z, E_{\min}, q, t) = Y(A, Z, E_{\min}, q, t_0) e^{-\sigma_{\mathrm{R}}\phi \cdot (t - t_0)}$$

mit	$Y(A,Z,E_{\mathrm{kin}},q,t)$:	Intensität zum beliebigen Zeitpunkt \boldsymbol{t}
	$Y(A,Z,E_{\mathrm{kin}},q,t_0)$:	Intensität zum Zeitpunkt t_0
	$\sigma_{ m R}$:	Reaktion squerschnitt
	ϕ	:	Neutronenfluß
	γ		

Der Reaktionsquerschnitt ergibt sich aus der Summe des Spaltquerschnitts und dem Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang. Die Funktion $e^{P_1+P_2\cdot(t-t_0)}$ wird an die experimentell bestimmte Abbrandkurve angepaßt. P_1 und P_2 sind Parameter, die aus dem Experiment erhalten werden. Falls die gemessene Abbrandkurve der theoretischen entspricht, muß gelten:

$$P_1 = \ln \left(Y(A, Z, E_{\min}, q, t_0) \right)$$
 und $P_2 = -\sigma_{\mathrm{R}} \phi$

Die Änderung der Intensität zum Zeitpunkt t bezüglich des Zeitpunktes t_0 beträgt damit:

$$\frac{Y(A,Z,E_{\rm kin},q,t)}{Y(A,Z,E_{\rm kin},q,t_0)} = \frac{Y(A,Z,E_{\rm kin},q,t)}{e^{P_1}} = e^{P_2 \cdot (t-t_0)}$$

Der Zeitpunkt des Einbringens des Targets in den Neutronenfluß wird als t_0 bezeichnet und es wird $t_0 = 0$ min gesetzt. Für die Abbrandkorrektur gilt damit:

$$Y(A,Z,E_{\rm kin},q) = \frac{Y(A,Z,E_{\rm kin},q,t)}{e^{P_2 \cdot t}}$$



Abbildung 4.2: Abbrandkurve des 233 U-Targets anhand von ${}^{10}Be^{4+}$ mit $E_{kin}=16$ MeV.

mit	$Y(A,\!Z,\!E_{\mathrm{kin}},\!q)$:	Ereignisse abbrandkorrigiert
			pro MeV und Stunde
	$Y(A,Z,E_{\min},q,t)$:	Ereignisse pro MeV und Stunde
	P_2	:	exp. Parameter

Man sieht, daß nur der Parameter P_2 für die Abbrandkorrektur relevant ist.

Abbildung 4.2 zeigt die Abbrandkurve des ²³³U-Targets. Es wurde täglich die Intensität des ternären ¹⁰Be⁴⁺ mit einer kinetischen Energie von 16 MeV bestimmt. Für die experimentellen Parameter ergibt sich $P_1 = 8,89\pm0,01$ und $P_2 = -(3,72\pm0,04)\cdot10^{-5}$ min⁻¹. Mittels der Beziehung $\sigma_{\rm R}\phi = \frac{\ln 2}{T_1}$ erhält man für die berechnete Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2},\text{theo}} = 26,2$ Tage sowie aus $P_2 = -\frac{\ln 2}{T_1}$ für die experimentell bestimmte $T_{\frac{1}{2},\text{exp}} = 12,9$ Tage. Das Targetmaterial nimmt damit etwa doppelt so schnell ab als aufgrund von Spaltung und Neutroneneinfang zu erwarten ist. Dieser Trend war bei allen benützten Targets zu beobachten. Eine Erklärung dafür könnte das Herausschleudern von Targetmaterial durch Spalt-



Abbildung 4.3: Energieverteilung von $A = 84 \text{ mit } q = 21 e^+$ zu zwei verschiedenen Zeitpunkten für die Reaktion ²²⁹Th(n_{th},f).

fragmente sein (das sogenannte "Sputtern"), welches bei dicken Targets bevorzugt vorkommt und von der Nickelabdeckfolie nicht völlig unterbunden wird.

In der ²³⁹Pu-Messung wurde analog zur ²³³U-Messung die Abbrandkurve mit Hilfe des ternären ¹⁰Be⁴⁺ mit einer kinetischen Energie von 16 MeV bestimmt. Für die experimentellen Parameter ergibt sich $P_1 = 8,59\pm0,01$ und $P_2 = -(8,09\pm0,12)\cdot10^{-5} \text{min}^{-1}$. Für die Halbwertszeiten folgt hieraus $T_{\frac{1}{2},\text{exp}} = 5,9$ Tage und $T_{\frac{1}{2},\text{theo}} = 15,0$ Tage. Für das ²³⁹Pu-Target erhält man also einen Faktor 2,5 zwischen berechneter und experimenteller Halbwertszeit.

In der ²²⁹Th-Messung war es aufgrund des geringen Spaltquerschnittes nicht möglich, eine Abbrandkurve mit ternären Teilchen aufzunehmen. Der Zeitaufwand dafür wäre so groß gewesen, daß das eigentliche Meßprogramm nicht mehr durchführbar gewesen wäre. Deshalb wurde die Abbrandkurve mittels binärer Fragmente bestimmt. Im Gegensatz zur Bestimmung mit ternären Teilchen muß man bei Fragmenten die gesamte Energieverteilung messen. Dies ist erforderlich, da sich die effektive Targetdicke und damit die Energieverteilung mit der Zeit ändert. Durch die Abnahme des Spaltmaterials sowie der Diffusion des spaltenden Materials in das Targetbacking oder in die Nickelabdeckfolie ändert sich die Dicke der Materieschicht, die das binäre Fragment durchqueren muß. Der



Abbildung 4.4: Zeitliche Veränderung von E_{max} der Masse A = 80 mit $q = 20 e^+$ für zwei unterschiedliche ²²⁹Th-Targets und einem ²³³U-Target.

Energieverlust, den ein Fragment von seinem Entstehungsort bis zum Verlassen der Nickelabdeckfolie erleidet, ist somit zeitabhängig. Abbildung 4.3 zeigt die Energieverteilung der Masse A = 84 mit $q = 21e^+$. Es ist die Energieverteilung zu Beginn und am Ende der Meßzeit gezeigt. Deutlich ist die Abnahme der Gesamtintensität aufgrund des Abbrandes zu sehen. Die Breite der Energieverteilung hat sich stark vergrößert, während das Maximum der Verteilung etwas zu kleineren Energien hin verschoben ist. Falls die Abbrandkurve nur bei einer festen kinetischen Energie aufgenommen wird, kann sie sogar ansteigen. In Abbildung 4.3 ist die Intensität z.B. bei $E_{\rm kin} = 78,75$ MeV am Anfang der Meßzeit kleiner als am Ende. Dies würde zu dem falschen Schluß führen, daß die Anzahl der Targetkerne zugenommen hat. Für die binäre Abbrandkurve wird deshalb über die Energie integriert. Bei den ternären Teilchen ist dies nicht nötig, da ihr Energieverlust im Target viel kleiner ist, und sich deshalb ihre Energieverteilung praktisch nicht mit der Zeit ändert.

In Abbildung 4.4 ist die Zeitabhängigkeit des Maximums der Energieverteilung E_{max} für die Masse 80 ($q = 20 e^+$) dargestellt. Die eingetragenen Werte sind nicht auf den mittleren Energieverlust im Target korrigiert. Das ²²⁹Th-Target 2 besaß als einziges Target keine Ni-Abdeckfolie. Es besteht eine lineare



Abbildung 4.5: Zeitliche Veränderung der Halbwertsbreiten FWHM der Energieverteilung für die Masse A = 80 mit $q = 20 e^+$ bei zwei unterschiedlichen ²²⁹Th-Targets und einem ²³³U-Target.

Abhängigkeit zwischen $E_{\rm max}$ und der Verweildauer der Targets im Neutronenfluß. Beim ²³³U-Target vergrößert sich $E_{\rm max}$ um 0,17 MeV/Tag. Ein analoges Verhalten wurde auch bei ²³⁷Np beobachtet [Dav 97]. Im Gegensatz dazu nimmt $E_{\rm max}$ bei beiden ²²⁹Th-Targets mit der Zeit ab. Bei Target 1 beträgt die Abnahme 0,20 MeV/Tag, bei Target 2 beträgt sie 0,12 MeV/Tag. Eine Abnahme um 0,05 MeV/Tag von $E_{\rm max}$ wurde bei ²⁴⁹Cf beobachtet [Hen 92]. Das unterschiedliche Verhalten von $E_{\rm max}$ je nach Targetmaterial könnte auf zwei gegenläufige Effekte zurückzuführen sein. Dies sind zum einen das Hineindiffundieren des Targetmaterials in das Backing, welches eine Verminderung von $E_{\rm max}$ zur Folge hat. Zum anderen sorgen das Absputtern von Targetmaterial, Hineindiffundieren in die Abdeckfolie und der Abbrand des Targets für eine Vergrößerung von $E_{\rm max}$. Je nachdem, welcher Effekt bei einem Aktinid überwiegt, steigt $E_{\rm max}$ in Abhängigkeit der Zeit an oder fällt ab.

Das zeitliche Verhalten der Halbwertsbreiten FWHM ist in Abbildung 4.5 dargestellt. Man beobachtet den einheitlichen Trend, daß zu Beginn die FWHMansteigt und danach — zumindest für das ²³³U- und ²²⁹Th-Target 1 — einen konstanten Wert annimmt. Ein analoges Verhalten wurde für ²⁴¹Pu beobachtet



Abbildung 4.6: Abbrandkurve der Masse A = 84 mit $q = 21 e^+$ von der Reaktion ²²⁹Th(n_{th},f).

[Fri 98]. Für 245 Cm [Fri 98] und 249 Cf [Hen 92] ergab sich eine zeitlich konstante FWHM, während für 237 Np [Dav 97] kein genereller Trend beobachtbar war.

Die zeitliche Änderung der Energieverteilung von Spaltfragmenten ist bei Experimenten am Massenseparator Lohengrin nicht vernachlässigbar. Die Energie $E_{\rm max}$ änderte sich bei den hier beschriebenen Messungen zwischen Beginn und Ende einer Meßzeit um etwa 2 MeV. Die Halbwertsbreite vergrößerte sich um bis zu 6 MeV. Falls eine Energieverteilung gemessen werden soll, muß die zeitliche Änderung von $E_{\rm max}$ und *FWHM* bestimmt und bei der Auswertung berücksichtigt werden. Dazu muß allerdings betont werden, daß die im vorliegenden Experiment zu untersuchende ternäre Spaltung ein seltener Prozeß ist und daher die größten Targetdicken eingesetzt werden, die im Falle des Urans und Plutoniums für einen sicheren Reaktorbetrieb zugelassen sind. Beim Thorium wurde die große Targetdicke von der kleinen Anreicherung des Materials mit dem fissilen Isotop ²²⁹Th diktiert. Bei Untersuchungen zum binären Spaltprozeß werden am Lohengrin in der Regel Targets mit wesentlich kleinerer Massenbelegung benutzt, bei denen die Probleme mit den zeitabhängigen Energieverteilungen besser zu meistern sind.

Um die Abbrandkurve der ²²⁹Th-Messung zu erhalten, wurde die Einstellung

 $\frac{A}{q} = 4$ gewählt. Dabei wurde $\frac{E_{\rm kin}}{q}$ von 3,50 bis 5,00 in 0,25–Schritten variiert. Man erhält die Energieverteilung von fünf verschiedenen Massen (mit entsprechender Ionenladung). Für diese fünf Massen (A = 80 ($q = 20 e^+$), A = 84 ($q = 21 e^+$), A = 88 ($q = 22 e^+$), A = 92 ($q = 23 e^+$) und A = 96 ($q = 24 e^+$)) wurde jeweils eine Abbrandkurve bestimmt. Der Mittelwert der sich aus diesen Kurven ergebenen Parameter P_2 wurde zur Abbrandkorrektur benützt. In Abbildung 4.6 ist die Abbrandkurve der Masse A = 84 mit $q = 21 e^+$ dargestellt. Für den Parameter P_2 ergibt sich bei dieser Abbrandkurve -(10,4±1,0)·10⁻⁶ min⁻¹. Als Mittelwert aus allen fünf Kurven erhält man für die Th-Messung $\overline{P_2} = -(9,90\pm0,51)\cdot10^{-6}$ min⁻¹. Dies entspricht einer Halbwertszeit $T_{\frac{1}{2},\rm theo}$ etwa 179 Tage beträgt. Dies bedeutet, daß der Verlust an Thorium etwa 3,5 mal größer war als nur aufgrund von Spaltung und Neutroneneinfang zu erwarten ist.

4.2.5 Totzeitkorrektur

Die Totzeit einer Ionisationskammer beträgt typischerweise 100-300 μ s, während die der Elektronik und des Datenaufnahmesystems einige ms beträgt. Da die Zählraten bei der ternären Kernspaltung höchstens einige Ereignisse pro Sekunde betragen, muß keine Totzeitkorrektur durchgeführt werden.

4.3 Die Ionenladungsverteilung

Nach den bisher durchgeführten Normierungen und Korrekturen sind die Ereignisse eines ternären Teilchens $Y(A,Z,E_{kin},q)$ nur noch von seiner Massenzahl A, Kernladung Z, kinetischen Energie E_{kin} und Ionenladung q abhängig. Um seine Energieverteilung zu erhalten, muß über die verschiedenen Ionenladungen summiert werden. Für die Energieverteilung gilt somit:

$$Y(A,Z,E_{\rm kin}) = \sum_{q=-\infty}^{Z} Y(A,Z,E_{\rm kin},q)$$

Neutrale Teilchen sowie Teilchen mit negativer Ionenladung können am Massenseparator Lohengrin nicht nachgewiesen werden. Ihr Anteil ist allerdings bei den betrachteten Energien verschwindend gering, so daß dieser Nachteil für die Messung nicht von Bedeutung ist. Um die Energieverteilung eines ternären Teilchens zu erhalten, muß bei jeder gemessenen Energie prinzipiell die Ausbeute $Y(A,Z,E_{\text{kin}},q)$ für alle positiven Ionenladungen bestimmt werden. Dies ist aus Gründen der begrenzten Strahlzeit nicht möglich. Deshalb muß die Ionenladungsverteilung F(q) der ternären Teilchen mit möglichst wenigen Parametern phänomenologisch beschrieben werden. Die Verteilung F(q) gibt an, welchen Anteil eine Ionenladung eines bestimmten Teilchens bei einer kinetischen Energie E_{kin} besitzt:

$$F(q) = \frac{Y(A, Z, E_{\rm kin}, q)}{Y(A, Z, E_{\rm kin})}$$

Bei Kenntnis von F(q) ist prinzipiell die Messung bei nur einer Ionenladung ausreichend, um die gesamte Energieverteilung $Y(A,Z,E_{kin})$ sowie nach Integration über die kinetische Energie die Ausbeute Y(A,Z) des ternären Teilchens zu bestimmen.

Die Ionenladungszustände ternärer Teilchen und Spaltfragmente fluktuieren beim Durchqueren des Targets aufgrund atomarer Wechselwirkungen zwischen den Elektronen des Ions und den Targetatomen. Im allgemeinen ist die Wahrscheinlichkeit, ein Ion nach Durchquerung des Targets in einem bestimmten Ladungszustand zu finden, von fünf Parametern abhängig: Kernladung Z, Geschwindigkeit v und Anfangsladung q_0 des Ions sowie Kernladung Z_T und Dichte des Targets.

4.3.1 Die Ionenladungsverteilung im Gleichgewicht

Beim Durchqueren eines Mediums variiert die Anzahl der Ionen einer gegebenen Ladung kontinuierlich und erreicht nach einer bestimmten Strecke einen Gleichgewichtswert. Ab dieser Strecke, welche von der Dichte des Mediums abhängt, ändert sich die mittlere Zahl der Ionen eines bestimmten Ladungszustandes nicht mehr in Abhängigkeit des zurückgelegten Weges, vorausgesetzt die Geschwindigkeit des Ions kann auf dem ganzen Weg als konstant angesehen werden. Die Verteilung der Ionenladung befindet sich im Gleichgewicht und ist damit auch unabhängig von der Anfangsladung q_0 der Ionen [Bet 84].

In Abbildung 4.7 ist die Massenbelegung μ_{Grenz} , bei der die Ionenladungsverteilungen F(q) ihr Gleichgewicht erreichen, in Abhängigkeit der Energie pro Nukleon W für verschiedene Nuklide dargestellt. Um die Daten zu beschreiben, wurde die Funktion

$$\mu_{\text{Grenz}}[\mu \text{g/cm}^2] = 5.9 + 22.4 W - 1.13 W^2$$



Abbildung 4.7: Massenbelegung μ_{Grenz} , bei der die Ionenladungsverteilung F(q)ihr Gleichgewicht erreicht, in Abhängigkeit der Energie pro Nukleon W für verschiedene Nuklide [Bar 79].

benützt [Bar 79]. Die ternären Teilchen und Spaltfragmente besitzen eine Energie von ca. 1 MeV/amu bis 2 MeV/amu und ihr μ_{Grenz} ist somit kleiner als 50 μ g/cm². Da die verwendeten Targets eine Massenbelegung zwischen 294 μ g/cm² und 356 μ g/cm² besitzen, sind die Ionenladungsverteilungen in den hier beschriebenen Experimenten immer im Gleichgewichtszustand. Die Ionenladungsverteilung F(q) ist damit unabhängig von der Dichte des Targets und der Anfangsladung q_0 des Ions.

4.3.2 Verlauf der Ionenladungsverteilung

Befindet sich die Ionenladungsverteilung F(q) im Gleichgewicht, so läßt sie sich für kleine Teilchengeschwindigkeiten ($v \leq 2 \cdot 10^8 \text{ cm/s}$) mit einer χ^2 -Verteilung, für große Geschwindigkeiten ($v \geq 3, 6 \cdot 10^8 \cdot Z^{0.45} \text{ cm/s}$) mit einer reduzierten χ^2_{red} -Verteilung und für mittlere Geschwindigkeiten mit einer Gaußverteilung beschreiben [Bau 82]. Am Beispiel der Ionenladungsverteilungen für ⁴⁰Ar ist dies in Abbildung 4.8 zu sehen. Da die Geschwindigkeiten der gemessenen ternären Teilchen größer als $3, 6 \cdot 10^8 \cdot Z^{0.45} \text{ cm/s}$ sind, muß für die Ionenladungsverteilung F(q) eine reduzierte χ^2_{red} -Verteilung angesetzt werden. Nach [Bau 81] gilt:



Abbildung 4.8: Beobachtete und berechnete Ionenladungsverteilungen F(q) für auf eine C-Folie geschossene ⁴⁰Ar-Ionen: $0.93 \cdot 10^8$ cm/s [Hve 70], $9.70 \cdot 10^8$ cm/s [Kny 81] und $34.02 \cdot 10^8$ cm/s [Bar 72].

$$F(q)_{\rm B} = C \cdot \chi^2_{\rm red} = C \cdot \frac{t^{\frac{\nu}{2}-1} \cdot {\rm e}^{-\frac{t}{2}}}{2^{\frac{\nu}{2}} \cdot \Gamma(\frac{\nu}{2})}$$

 mit

$$C = \frac{2 \cdot (Z - \bar{q} + 2)}{d^2}$$

$$t = C \cdot (Z - q + 2)$$

$$\nu = \frac{2 \cdot (Z - \bar{q} + 2)^2}{d^2}$$

$$\bar{q} = \sum_q q \cdot F(v, q)$$

$$d = (\sum_q (q - \bar{q})^2 F(q))^{0,5}$$

$$Z = \text{Kernladung Ion}$$

$$\Gamma(\frac{\nu}{2}) = \text{Gammafunktion}$$

Die Ionenladungsverteilung besitzt zwei freie Parameter, die mittlere Ionenladung \bar{q} und die Breite *d* der Verteilung. Für diese Werte werden in der Literatur verschiedene semi-empirische Formeln angegeben, wie z.B. in [Bar 75], [ToD 79] und [Nik 68].

Es stellte sich allerdings heraus, daß die gemessenen Ionenladungsverteilungen

durch $F(q)_{\rm B} = C \cdot \chi^2_{\rm red}$ nicht gut zu beschreiben sind. Dies könnte unter anderem am Einfluß des Targetmaterials und der Temperatur auf F(q) liegen. Bei den Experimenten von Baudinet–Robinet [Bau 81] wurden Ionen auf eine Kohlenstofffolie geschossen, wobei sich die Folie kaum aufheizt. Im Gegensatz dazu wurde bei den hier beschriebenen Experimenten Thorium–, Uran– und Plutonium–Targets mit einer Nickelabdeckfolie benützt, welche sich aufgrund der großen Spaltrate stark aufheizen.

Aus diesen Gründen wurde die Ionenladungsverteilung $F(q)_{\rm G}$ von Göpfert verwendet [Göp 90]. Von ihm wurde F(q) speziell für ternäre Teilchen, welche am Massenspektrometer Lohengrin gemessen wurden, semi-empirisch bestimmt. Dabei wird die Ionenladungsverteilung $F(q)_{\rm B}$ von Baudinet-Robinet noch mit einem Faktor multipliziert:

$$F(q)_{\rm G} = F(q)_{\rm B} \cdot e^{-a} = C \cdot \chi^2_{\rm red} \cdot e^{-a}$$
(4.1)

 mit

$$a = \left(\frac{v_q}{v}\right)^{\sqrt{(Z+Z_{\text{eff}})/Z_{\text{eff}}}}$$

$$v_q = 0,593 \cdot \sqrt{E_B} [10^6 \text{ m/s}]$$

$$E_B = \text{Bindungsenergie des q-ten Ionelektrons [eV]}$$

$$v = \text{Ionengeschwindigkeit } [10^6 \text{ m/s}]$$

$$Z = \text{Kernladung Ion [e^+]}$$

$$Z_{\text{eff}} = \text{Parameter}$$

Die mittlere Ionenladung \bar{q} und Breite d werden in [Göp 90] durch geringfügige Änderungen der semi-empirischen Formeln von Baron [Bar 75] sowie Baudinet-Robinet [Bau 81] bestimmt:

$$\bar{q} = (Z + \frac{1}{Z^2})(1 - e^{-3,8585 \cdot f})$$

 $d = (k_1 - k_2 \cdot v) \cdot k_3$

 mit

$$f = \frac{v}{13,89} \cdot \left(Z + \frac{1}{Z^2}\right)^{-(0,48 - \frac{1}{2 \cdot Z_{\text{eff}}})}$$

$$k_1 = 0,426$$

$$k_{2} = 0,02 \cdot \left(Z + \frac{1}{Z}\right)^{-0,475}$$

$$k_{3} = \left(Z + \frac{1}{Z}\right)^{\left(0,447 - \frac{1}{Z_{\text{eff}}^{2}}\right)}$$

Die verwendete Ionenladungsverteilung $F(q)_{\rm G}$ hängt für ein bestimmtes ternäres Teilchen neben der Geschwindigkeit nur noch vom Parameter $Z_{\rm eff}$ ab. Mit Hilfe des Parameters werden die Ionenladungsverteilungen an die Meßdaten angepaßt.

4.3.3 Gemessene Ionenladungsverteilungen

Der Parameter Z_{eff} muß aus den Meßdaten bestimmt werden. Dazu ist es nötig, bei mindestens einer Geschwindigkeit alle relevanten Ionenladungen zu messen. In den Abbildungen 4.9 und 4.10 sind die Ionenladungsverteilungen für ¹⁰Be und ¹⁴C in Abhängigkeit von der Geschwindigkeit aufgetragen. Für jede Ionenladung ist der Verlauf ihres Anteils an allen Ionenladungen zu sehen, die in ihrer Summe auf 1 bzw. 100% normiert ist. Bei kleinen Geschwindigkeiten sind die Teilchen zum größten Teil neutral. Je größer ihre Geschwindigkeit ist, desto größer ist ihr Anteil bei höheren Ionenladungen. Bei hohen Geschwindigkeiten nähert sich die Ionenladung des Teilchens asymptotisch seiner Kernladung an. Der Parameter Z_{eff} wurde derart gewählt, daß sich die beste Übereinstimmung zwischen den berechneten Verteilungen $F(q)_{\text{G}}$ und den Meßpunkten ergab. Für die Meßdaten kann man natürlich auch eine Darstellung wie in Abbildung 4.8 wählen, bei der für eine Geschwindigkeit v die Anteile F(q) der Ionenladung q aufgetragen sind.

Für Geschwindigkeiten bzw. kinetische Energien, bei denen nur für eine einzige Ionenladung die Ausbeute $Y(A,Z,E_{kin},q)$ bestimmt wurde, ist es nun möglich, die über alle Ionenladungen summierte Ausbeute $Y(A,Z,E_{kin})$ zu bestimmen:

$$Y(A,Z,E_{\rm kin}) = \frac{Y(A,Z,E_{\rm kin},q)}{F(q)_{\rm G}}$$
(4.2)

Die aus den Meßdaten bestimmten Parameter Z_{eff} steigen mit der Kernladung und Masse der ternären Teilchen an. Die Z_{eff} -Werte für das ²³³U-Target sind in Tabelle 4.2 anhand einiger Beispiele gezeigt. Für ¹⁵B und ²⁴Ne konnten nur Meßwerte bei einer Ionenladung aufgenommen werden. Unter Berücksichtigung des Verlaufs bezüglich der Kernladung und Masse wurde Z_{eff} für ¹⁵B auf 4,8 sowie für ²⁴Ne auf 16 gesetzt. Ein Vergleich des Parameters Z_{eff} bei unterschiedlichen Targets zeigt, daß er sich für ein bestimmtes ternäres Teilchen kaum ändert. Für ¹⁰Be ergab sich 3,3 sowie 3,7 bei den ²²⁹Th-Targets, 3,5 beim ²³³U-Target und 3,7 beim ²³⁹Pu-Target.



Abbildung 4.9: Ionenladungsverteilung von ¹⁰Be. Die Punkte entsprechen den Meßwerten, die Kurven den berechneten Verteilungen $F(q)_{G}$.

Wenn einmal die Ionenladungsverteilungen für alle in der Messung beobachteten ternären Teilchen bekannt sind, lassen sich die Energieverteilungen und Ausbeuten der Teilchen über alle Ionenladungszustände summiert bestimmen. Dies sind letztlich die physikalisch interessierenden Größen, die mit der Theorie zu vergleichen und zu interpretieren sind.

A	7	8	10	12	12	13	14	14	15	16	18	16	21
Z	3	3	4	4	5	5	5	6	6	6	6	7	8
$Z_{\rm eff}$	3,3	3,7	3,5	3,3	3,8	4,7	4,8	6,0	6,0	6,0	6,4	$10,\!0$	$15,\! 0$

Tabelle 4.2: Aus dem Experiment bestimmte Parameter $Z_{\rm eff}$ der ternären Teilchen für das $^{233}{\rm U-Target}.$



Meßwerten, die Kurven den berechneten Verteilungen $F(q)_{G}$.

Kapitel 5

Ergebnisse

5.1 Die 229 Th(n_{th},f) Reaktion

Thorium ist das leichteste Aktinid, bei dem Wirkungsquerschnitte für mit thermischen Neutronen induzierte Kernspaltungen bekannt sind. Aus diesem Grunde ist es ein wichtiger Eckpunkt für die systematische Untersuchung ternärer Spaltung. Vor Durchführung der hier beschriebenen Messungen wurden nur Tritonen und α -Teilchen als ternäre Teilchen in der Reaktion ²²⁹Th(n_{th},f) beobachtet [Wag 92]. Dies liegt zum einen an dem selten zu erhaltenden Thoriumisotop ²²⁹Th und zum anderen an dem sehr kleinen Wirkungsquerschnitt von 30,5 barn für mit thermischen Neutronen induzierte Kernspaltung. Es wird daher ein sehr hoher Neutronenfluß benötigt, um seltenere schwerere ternäre Teilchen als die bekannten α -Teilchen oder Tritonen zu beobachten. Solch ein hoher Neutronenfluß kombiniert mit einem Massenseparator wird derzeit nur am ILL zur Verfügung gestellt.

Im November 1996, Juni 1997 und März 1998 wurde jeweils eine dreiwöchige Meßzeit durchgeführt.

5.1.1 Detektierte ternäre Teilchen

In den durchgeführten Messungen wurden insgesamt 17 verschiedene Nuklide mit $2 \le Z \le 10$ nachgewiesen [Wös 98b]. Alle diese ternären Teilchen wurden zum ersten Mal bei der Reaktion ²²⁹Th(n_{th},f) beobachtet. In Tabelle 5.1 sind die verschiedenen detektierten Nuklide nach ihrer Kernladung geordnet angegeben. Bei sechs dieser ternären Teilchen (⁶He, ⁹Li, ¹²B, ¹⁵B, ¹⁸C und ²⁰N) war es leider

Element	Isotop
Helium	⁶ He
Lithium	⁷ Li , ⁹ Li
Beryllium	${}^{9}\text{Be}, {}^{10}\text{Be}, {}^{12}\text{Be}$
Bor	${}^{12}\mathrm{B}$, ${}^{15}\mathrm{B}$
Kohlenstoff	$^{14}\mathrm{C}$, $^{15}\mathrm{C}$, $^{18}\mathrm{C}$
Stickstoff	^{18}N , ^{20}N
Sauerstoff	^{20}O , ^{21}O
Fluor	$^{21}\mathrm{F}$
Neon	²⁴ Ne

Tabelle 5.1: Beobachtete ternäre Teilchen der Reaktion 229 Th (n_{th}, f) .

aufgrund zu weniger Meßpunkte beziehungsweise Ereignissen weder möglich ihre Energieverteilung noch ihre Ausbeute zu bestimmen.

5.1.2 Energieverteilungen

Die experimentell bestimmten Energieverteilungen ternärer Teilchen lassen sich durch Gaußverteilungen beschreiben. Aus diesem Grunde wird die Funktion

$$Y(A, Z, E_{\rm kin}) = a \cdot \exp\left(-\frac{(E_{\rm kin} - \overline{E}_{\rm kin})^2}{2\sigma_{E_{\rm kin}}^2}\right)$$

an die Datenpunkte angepaßt. \overline{E}_{kin} stellt die mittlere kinetische Energie und $2,35 \cdot \sigma_{E_{kin}}$ die Halbwertsbreite *FWHM* der Verteilung dar. Der Parameter *a* ist abhängig von der Fläche unter der Gaußkurve.

In Abbildung 5.1 und 5.2 ist die experimentell bestimmte Energieverteilung der ternären Teilchen ¹⁰Be [Sei 97] und ¹⁵C gezeigt. Die Ausbeuten $Y(A,Z,E_{\rm kin},q)$ der unterschiedlichen Ionenladungen sind mit verschiedenen Symbolen gekennzeichnet. Die nach Gleichung 4.2 berechneten Ausbeuten $Y(A,Z,E_{\rm kin})$ werden durch ausgefüllte Kreise symbolisiert. An diese wird eine Gaußverteilung angepaßt, die die experimentell bestimmte Energieverteilung des ternären Teilchens darstellt. Diese Energieverteilung ist als eine durchgezogene Kurve in den Abbildungen 5.1 und 5.2 eingezeichnet. Die gestrichelten Kurven stellen die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen dar. Es ist gelungen, die Energieverteilungen von insgesamt vier der ternären Teilchen, nämlich ¹⁰Be, ¹⁵C, ²⁰O und ²¹O,



Abbildung 5.1: Energieverteilung des ternären Teilchens ¹⁰Be (durchgezogene Kurve) [Sei 97]. Die gestrichelten Kurven geben die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen an. 229mi (



Abbildung 5.2: Energieverteilung des ternären Teilchens ¹⁵C (durchgezogene Kurve). Die gestrichelten Kurven geben die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen an.

TP	$\overline{E}_{ m kin}$ /	FWHM /
	${ m MeV}$	${ m MeV}$
$^{10}\mathrm{Be}$	$18,\!4{\pm}0,\!5$	$17,5{\pm}1,2$
$^{15}\mathrm{C}$	$23,8 {\pm}0,9$	$15,9{\pm}1,8$
$^{20}\mathrm{O}$	$22,\!9\pm\!2,\!8$	$21,5\pm 3,8$
^{21}O	$24,8 \pm 3,8$	$12,9\pm 12,1$

Tabelle 5.2: Experimentell bestimmte mittlere Energien \overline{E}_{kin} und Halbwertsbreiten *FWHM* ternärer Teilchen aus der Reaktion ²²⁹Th(n_{th},f).

zu bestimmen. In Tabelle 5.2 ist deren mittlere Energie \overline{E}_{kin} und Halbwertsbreite *FWHM* gezeigt. Für die übrigen ternären Teilchen konnten keine hinreichend vollständigen Energieverteilungen aufgenommen werden um experimentelle Werte für die Momente der Verteilungen angeben zu können.

Am Massenseparator Lohengrin läßt sich immer nur ein einziges Teilchen eines Spaltprozesses detektieren. Anhand der Energieverteilung des leichten Teilchens läßt sich dennoch erkennen, daß es nicht aus einer theoretisch denkbaren stark asymmetrischen binären Spaltung stammt. Die Energieverteilung verläuft nämlich bis zu sehr kleinen Energien, ihr niederenergetischer Ausläufer erreicht sogar die kinetische Energie Null. Aufgrund des Impulserhaltungssatzes ist es aber bei einer binären Spaltung nicht möglich, daß eines der Fragmente keine kinetische Energie besitzt. Selbst von Null verschiedene, aber sehr kleine kinetische Energien sind bei einer asymmetrischen binären Spaltung nicht möglich. Die kleinste in diesen hier beschriebenen Experimenten gemessene Teilchenenergie besitzt das aus der Reaktion ²³³U(n_{th},f) stammende ¹⁰Be mit 4,5 MeV. Unter der Annahme, daß die gesamte kinetische Energie aufgrund der Coulombabstoßung zustande kommt, müßte dieses Teilchen im binären Fall bei seiner Entstehung einen Abstand von 113 fm zum schweren Fragment besessen haben. Dies ist völlig unrealistisch, da der Compoundkern schon bei viel kleineren Deformationen spaltet. Dagegen sind die in den Abbildungen 5.1 und 5.2 gezeigten Energieverteilungen voll verträglich mit den Energieverteilungen von ternären Teilchen, die in der Halsregion zwischen den beiden Hauptfragmenten geboren werden. Hier können die Coulombkräfte, die die beiden Fragmente auf das ternäre Teilchen ausüben, sich gegenseitig kompensieren, so daß das ternäre Teilchen mit Energien nahe Null emittiert wird.

5.1.3 Ausbeuten

Bei Angaben von Ausbeuten ternärer Teilchen ist es in der Literatur üblich, sie auf 10^4 ternäre α -Teilchen zu normieren. Am Massenseparator Lohengrin lassen sich die Ausbeuten von α -Teilchen nicht bestimmen. Ein Nachweis dieser Teilchen ist nur für Energien bis etwa 11 MeV möglich. Ihre mittlere kinetische Energie von 15,9 MeV läßt sich nicht erreichen. Dies liegt an den benötigten hohen Spannungen des Kondensators für große α -Energien, die sich mit der bestehenden Hochspannungsversorgung nicht realisieren lassen. Eine weitere Beschränkung ist der Gasdruck der Ionisationskammer, der aus Sicherheitsgründen 160 mbar nicht überschreiten darf. Dies hat zur Folge, daß die leichten α -Teilchen bei hohen Energien nicht vollständig in der Ionisationskammer gestoppt werden. Eine Bestimmung ihrer kinetischen Energie und damit ihrer Masse ist in diesem Fall nicht mehr möglich.

Um dennoch die Ausbeuten detektierter ternärer Teilchen auf $10^4 \alpha$ -Teilchen normieren zu können, wurde im durchgeführten Experiment die Energieverteilung des binären Fragments mit der Masse A = 84 bestimmt. Mit Kenntnis des prozentualen Anteils der Masse A = 84 an den leichten binären Fragmenten $(Y'(A = 84) = 9,41\pm0,23 \text{ [Boc 90]})$ und des Verhältnisses der Ausbeuten von ternären α -Teilchen zu binären Fragmenten $(\alpha/B = (2,17\pm0,10)\cdot10^{-3} \text{ [Wag 92]})$ lassen sich alle Ausbeuten auf 10^4 ternäre α -Teilchen normieren. Es gilt für die Ausbeuten der ternären Teilchen:

$$Y(A,Z)_{\alpha} = \frac{\int_{0}^{\infty} Y(A,Z,E_{\rm kin}) dE_{\rm kin}}{\int_{0}^{\infty} Y(A=84,E_{\rm kin}) dE_{\rm kin}} \cdot 10^{4}$$
(5.1)
$$= \frac{\int_{0}^{\infty} Y(A,Z,E_{\rm kin}) dE_{\rm kin}}{\int_{0}^{\infty} Y(A=84,E_{\rm kin}) dE_{\rm kin}} \cdot 433641$$

Bei Bestimmung der auf α -Teilchen normierten ternären Ausbeuten $Y(A,Z)_{\alpha}$ muß auf Literaturdaten für Y'(A = 84) und α/B zurückgegriffen werden. Aus diesem Grunde wird zusätzlich noch die ternäre Teilchenausbeute normiert auf ternäre ¹⁰Be angegeben, da bei dieser Normierung nur eigene Meßdaten verwendet



Abbildung 5.3: Ionenladungsverteilung der Masse A = 84 für fünf unterschiedliche Energien.

werden. In diesem Fall gilt für die Ausbeuten:

$$Y(A,Z)_{10}_{Be} = \frac{\int_{0}^{\infty} Y(A,Z,E_{kin}) dE_{kin}}{\int_{0}^{\infty} Y(A=10,Z=4,E_{kin}) dE_{kin}}$$
(5.2)

Um nach Gleichung 5.1 ternäre Teilchenausbeuten zu erhalten, muß die Energieverteilung der Masse A = 84 bestimmt werden. Die Vorgehensweise zur Ermittlung dieser Verteilung ist analog der bei den ternären Teilchen. Die Ionenladungsverteilung der Masse A = 84 wird für fünf verschiedene Energien bestimmt. Die vorkommenden Geschwindigkeiten der Masse A = 84 befinden sich in einem Geschwindigkeitsintervall, in dem die Ionenladungsverteilung eine Gaußverteilung für alle fünf gemessenen Energien. Ein Ansteigen der mittleren ladungsverteilung für alle fünf gemessenen Energie ist in Abbildung 5.3 zu beobachten. Die mittlere Ionenladung steigt von $\overline{q} = 19.2 e^+$ bei einer Energie von 94,7 MeV bis zu $\overline{q} = 20.4 e^+$ bei 111,1 MeV. Dies ist verständlich, da bei höheren Energien die Wahrscheinlichkeit für ein Abstreifen von Elektronen in Materie größer ist.

Bei Kenntnis der Ionenladungsverteilungen für die fünf gemessenen Energien


Abbildung 5.4: Energieverteilung der Masse A = 84 (durchgezogene Kurve). Die gestrichelten Kurven symbolisieren die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen.

lassen sich die Ausbeuten $Y(A = 84, E_{kin})$ und damit die Energieverteilung bestimmen. Abbildung 5.4 zeigt die Energieverteilung der Masse A = 84. Bei den gemessenen fünf Energien gibt es nur zwischen den Ionenladungen $q = 14 e^+$ und $q = 26 e^+$ nicht verschwindende Ausbeuten (siehe Abbildung 5.3). Aus diesen Grund gilt für die betrachteten Energien:

$$Y(A = 84, E_{\rm kin}) = \sum_{q=14}^{26} Y(A = 84, E_{\rm kin}, q)$$

An die daraus resultierenden fühl Datenpunkte $Y(A = 84, E_{\rm kin})$ wird eine Gaußverteilung angepaßt. Für die mittlere kinetische Energie der Masse A =84 findet man $\overline{E}_{\rm kin} = (100, 6\pm 1, 0)$ MeV. Bei einer Messung von M. Asghar [Asg 82] ergab sich $\overline{E}_{\rm kin} = 100$ MeV (ohne Fehlerangabe), während N. Boucheneb $\overline{E}_{\rm kin} = (97, 8\pm 0, 2)$ MeV erhielt [Bou 89].

Nach Bestimmung der Energieverteilung der Masse A = 84 lassen sich alle ternären Teilchenausbeuten auf $10^4 \alpha$ -Teilchen normieren.

In den Tabellen 5.3 bis 5.5 sind sämtliche bis heute bekannten mittleren kinetischen Energien, Halbwertsbreiten und Ausbeuten ternärer Teilchen der Reaktion

	Diese Messung				
\mathbf{TP}	$\overline{m{E}}_{ m kin}$ /	FWHM /	Ausbeute $/$	Ausbeute $/$	
	${ m MeV}$	${ m MeV}$	$Y(^{10}{ m Be})$	$Y(lpha) \cdot 10^{-4}$	
⁷ Li			$(1,3\pm0,2)\cdot10^{-1}$	$10,4{\pm}1,7$	
⁹ Be			$(5,1\pm3,0)\cdot10^{-2}$	$3,8{\pm}2,3$	
$^{10}\mathrm{Be}$	$18,\!4{\pm}0,\!5$	$17,5{\pm}1,2$	1	$75,7{\pm}7,1$	
¹² Be		_	$(1,4\pm0,6)\cdot10^{-2}$	$1,1{\pm}0,5$	
$^{14}\mathrm{C}$			$(2,5\pm0,4)\cdot10^{-1}$	$20,9\pm 2,4$	
$^{15}\mathrm{C}$	$23,8{\pm}0,9$	$15,9{\pm}1,8$	$(5,3\pm0,6)\cdot10^{-2}$	$4,3{\pm}0,4$	
$^{18}\mathrm{N}$			$(1,6\pm1,1)\cdot10^{-3}$	$(1,2\pm0,9)\cdot10^{-1}$	
²⁰ O	$22,\!9\pm\!2,\!8$	$21,5\pm 3,8$	$(2,4\pm0,6)\cdot10^{-2}$	$1,\!8\!\pm\!0,\!5$	
$^{21}\mathrm{O}$	$24,8\pm 3,8$	$12,9\pm 12,1$	$(1,9\pm0,7)\cdot10^{-3}$	$(1,4\pm0,6)\cdot10^{-1}$	
21 F			$(3,2\pm2,7)\cdot10^{-4}$	$(2,5\pm2,0)\cdot10^{-2}$	
²⁴ Ne			$(3,8\pm3,1)\cdot10^{-4}$	$(2,9\pm2,4)\cdot10^{-2}$	

Tabelle 5.3: Mittlere Energien \overline{E}_{kin} , Halbwertsbreiten *FWHM* und Ausbeuten ternärer Teilchen für die Reaktion ²²⁹Th(n_{th},f).

	Wagemans		
\mathbf{TP}	$\overline{E}_{ m kin}$ /	FWHM /	Ausbeute $/$
	${ m MeV}$	${ m MeV}$	$Y(lpha) \cdot 10^{-4}$
³ H			$392{\pm}71$
⁴ He		$9,4{\pm}0,4$	10^{+4}

Tabelle 5.4: Mittlere Energien \overline{E}_{kin} , Halbwertsbreiten *FWHM* und Ausbeuten ternärer Teilchen der Reaktion ²²⁹Th(n_{th},f) nach [Wag 91].

	Wagemans
B/LRA	461 ± 21
B/T	427 ± 22

Tabelle 5.5: Das Verhältnis der Ausbeuten von binären Fragmenten zu ternären α -Teilchen (Long Range Alphas) B/LRA sowie der Ausbeuten von binären Fragmenten zu ternären Teilchen B/T für die Reaktion ²²⁹Th(n_{th},f) [Wag 92].



Abbildung 5.5: Energieverteilung von ⁷Li (durchgezogene Kurve). Die gestrichelten Kurven geben die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen an. Die mittlere Energie wurde gesetzt. 229-



Abbildung 5.6: Energieverteilung von ²⁴Ne (durchgezogene Kurve). Die gestrichelten Kurven geben die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen an. Die mittlere Energie und die Halbwertsbreite wurden gesetzt.

²²⁹Th(n_{th},f) gezeigt. Tabelle 5.3 enthält die bei der vorliegenden Messung erhaltenen Ergebnisse. Für ternäre Teilchen, bei denen keine mittlere kinetische Energie und Halbwertsbreite angegeben ist, wurde entweder beides oder eines von beiden gesetzt. Für ⁷Li existieren nur Messdaten bei kleineren Energien als der mittleren Energie (siehe Abbildung 5.5). Aus diesem Grund wird die mittlere kinetische Energie der ²³³U(n_{th},f) Reaktion verwendet ($\overline{E}_{kin} = 15,8$ MeV), die parallel zu der Reaktion ²²⁹Th(n_{th},f) untersucht wurde. Bei ⁹Be wird die mittlere kinetische Energie \overline{E}_{kin} auf 15,0 MeV und die Halbwertsbreite *FWHM* auf 11,0 MeV gesetzt. Diese Werte sind aus der Reaktion ²³⁵U(n_{th},f) übernommen worden [Wag 91], da sie in der Reaktion ²³³U(n_{th},f) nicht bestimmt wurden. Im Falle von ¹²Be und ¹⁴C wird $\overline{E}_{kin} = 13,8$ MeV beziehungsweise $\overline{E}_{kin} = 24,9$ MeV aus der Reaktion ²³³U(n_{th},f) gesetzt. Bei ¹⁸N existieren nur sehr wenig Meßdaten mit großen Fehlern, so daß für eine sinnvolle Anpassung einer Gaußverteilung an die Meßpunkte die Halbwertsbreite vorgegeben werden muß. Sie wird auf 16,5 MeV gesetzt, dies ist der aus der Reaktion ²³³U(n_{th},f) erhaltene Wert für ¹⁸N.

Bei der Bestimmung der Ausbeuten von ²¹F und ²⁴Ne gelangt man an die Nachweisgrenze des Massenseparators Lohengrin und damit der heutigen Techniken. Bei ²¹F wurden nach Meßzeiten von insgesamt 16,3 Tagen nur fünf Kerne nachgewiesen, während bei ²⁴Ne nach 14,6 Tagen sieben Kerne detektiert werden konnten. Die mittlere Energie von ²¹F wird auf 30,0 MeV, die Halbwertsbreite auf 23,5 MeV gesetzt. Diese Werte wurden anhand der mittleren Energien und Halbwertsbreiten von ²¹F aus den Reaktionen ²⁴¹Am($2n_{th}$,f), ²⁴⁵Cm(n_{th} ,f) und ²⁴⁹Cf(n_{th} ,f) abgeschätzt [Hes 97, Dav 97]. Abbildung 5.6 zeigt die Energieverteilung von ²⁴Ne. Die mittlere Energie ist auf 31,6 MeV, die Halbwertsbreite auf 18,8 MeV gesetzt. Die sieben detektierten Kerne verteilen sich auf drei unterschiedliche Energien.

Abbildung 5.7 zeigt einen Vergleich zwischen den bis zu diesen Messungen bekannten ternären Teilchenausbeuten von C. Wagemans [Wag 91] und den in dieser Arbeit bestimmten. Da aufgrund der experimentellen Bedingungen am Massenseparator Lohengrin keine von C. Wagemans angegebene ternäre Teilchenausbeute gemessen werden konnte, ist ein direkter Vergleich der Ausbeuten nicht durchführbar.

Bei der Diskussion der ternären Teilchenausbeuten in Abschnitt 6.3.2 wird darauf hingewiesen werden, daß die in der Reaktion 229 Th (n_{th},f) ermittelten Ausbeuten deutlich höher liegen als zu erwarten ist. Eine Verunreinigung des Targetmaterials durch Aktinide, wie z.B. 239 Pu, könnte dies erklären. 239 Pu besitzt einen



Abbildung 5.7: Vergleich der Ausbeuten ternärer Teilchen aus dieser Messung mit denjenigen von C. Wagemans [Wag 91] für die Reaktion 229 Th (n_{th},f) . Die Abszissenachse ist der besseren Übersicht halber unterteilt.

etwa 24 mal größeren Wirkungsquerschnitt als ²²⁹Th für mit thermische Neutronen induzierte Kernspaltung. Außerdem ist, wie in Abschnitt 6.3.2 diskutiert werden wird, bei schweren Compoundsystemen die Ausbeute für ein spezielles ternäres Teilchen größer als bei leichten Compoundsystemen. Deshalb ist beim ²³⁹Pu für z.B. ²⁴Ne eine um mehr als eine Größenordnung größere Ausbeute als beim ²²⁹Th zu erwarten. Zusammen mit dem 24 mal größeren Wirkungsquerschnitt erwartet man deshalb für das ternäre ²⁴Ne eine um etwa 240 mal größere Ausbeute pro Targetkern als beim 229 Th. Da nur $(7,2\pm0,3)$ % des Targetmaterials aus ²²⁹Th bestand (siehe Abschnitt 3.2), könnten bei einer Verunreinigung von nur etwa 0,03 % des gesamten Targetmaterials durch ²³⁹Pu etwa gleich viel ternäre ²⁴Ne–Nuklide von ²³⁹Pu wie von ²²⁹Th emittiert werden. Bei einer stärkeren Verunreinigung würde sogar der Großteil der im Experiment detektierten ²⁴Ne-Nuklide von ²³⁹Pu stammen. Da sich eine eventuelle Verunreinigung des Thoriummaterials mit Aktiniden nicht mehr feststellen läßt, sind die in der Reaktion 229 Th (n_{th}, f) angegebenen ternären Ausbeuten eher als obere Grenzen aufzufassen.

Element	Isotop		
Helium	⁶ He		
Lithium	⁷ Li , ⁸ Li , ⁹ Li		
Beryllium	⁹ Be, ¹⁰ Be, ¹² Be, ¹⁴ Be		
Bor	${}^{12}\mathrm{B}$, ${}^{13}\mathrm{B}$, ${}^{14}\mathrm{B}$, ${}^{15}\mathrm{B}$		
Kohlenstoff	$^{14}\mathrm{C}$, $^{15}\mathrm{C}$, $^{16}\mathrm{C}$, $^{18}\mathrm{C}$		
Stickstoff	${}^{16}\mathrm{N}$, ${}^{18}\mathrm{N}$, ${}^{20}\mathrm{N}$		
Sauerstoff	^{20}O , ^{21}O		
Fluor	$^{20}\mathrm{F}$, $^{21}\mathrm{F}$, $^{24}\mathrm{F}$		
Neon	$^{24}\mathrm{Ne}$		

Tabelle 5.6: Bei der Reaktion $^{233}U(n_{th},f)$ beobachtete ternäre Teilchen.

5.2 Die 233 U(n_{th},f) Reaktion

Das ²³³U–Nuklid besitzt einen Wirkungsquerschnitt von 531,1 barn für induzierte Spaltung mit thermischen Neutronen. Aufgrund des viel größeren Wirkungsquerschnittes und der größeren Targetmasse im Vergleich zur oben beschriebenen Thoriummessung ist es möglich, ternäre Teilchen mit deutlich kleineren Ausbeuten zu bestimmen. Vor Durchführung der hier beschriebenen Messungen sind bei der Reaktion ²³³U(n_{th},f) ternäre Teilchen bis hin zu ¹⁰Be beobachtet worden [Vor 69]. In diesem Experiment wird von ¹⁰Be ausgehend nach schwereren ternären Teilchen gesucht.

Im Mai 1996 wurde eine zweiwöchige Meßzeit durchgeführt.

5.2.1 Detektierte ternäre Teilchen

Tabelle 5.6 zeigt die in dieser Messung beobachteten ternären Teilchen. Es ist gelungen, 25 unterschiedliche ternäre Teilchen im Bereich $2 \leq Z \leq 10$ und $6 \leq A \leq 24$ zu detektieren [Wös 97, Wös 98a]. Davon sind 22 erstmals bei der ²³³U(n_{th},f) Reaktion beobachtet worden. Zusätzlich gab es einen Hinweis auf das protonenreiche ternäre Teilchen ¹⁵O. In Abbildung 4.1 erkennt man im ΔE – E_{tot} –Scatterplot im Bereich des Nuklids ¹⁵O mehrere Ereignisse. Bei genauerer Betrachtung bemerkt man allerdings, daß diese Ereignisse zu kleinen E_{tot} – Kanalnummern hin verschoben sind. Sie liegen nicht genau auf der Massenlinie



Abbildung 5.8: Energieverteilung von ¹⁰Be (durchgezogene Kurve). Die gestrichelten Kurven geben die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen an.

A = 15. Ob es sich wirklich um ¹⁵O handelt konnte nicht geklärt werden. Aus diesem Grund wurden diese Ereignisse nicht ausgewertet. In [Bau 92] und [Kös 98] wird ebenfalls von der Beobachtung von ¹⁵O berichtet. Man kann vermuten, daß es sich bei den fraglichen Ereignissen um eine Kontamination durch gesputtertes ¹⁶O handelt. Diese Vermutung stützt sich auf die in Abbildung 4.1 beobachtete hohe Intensität des stabilen ¹⁸O–Isotops und die damit aus dem natürlichen Isotopenverhältnis von ¹⁸O/¹⁶O = 0,2/99,8 folgende extrem hohe Intensität von ¹⁶O.

5.2.2 Energieverteilungen

Für 15 verschiedene ternäre Teilchen ist die Energieverteilung ermittelt worden. Die Abbildungen 5.8 bis 5.11 zeigen die Energieverteilungen von ¹⁰Be, ¹³B, ¹⁴C und ¹⁸N. Die durchgezogenen Kurven geben die Energieverteilungen der ternären Teilchen an, die gestrichelten Kurven die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen (zur Bestimmung der Energieverteilung siehe Abschnitt 5.1.2). In Tabelle 5.7 sind die erhaltenen Halbwertsbreiten *FWHM* und mittleren kinetischen Energien \overline{E}_{kin} gezeigt.



Abbildung 5.9: Energieverteilung von ¹³B (durchgezogene Kurve). Die gestrichelten Kurven geben die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen an.



Abbildung 5.10: Energieverteilung von ${}^{14}C$ (durchgezogene Kurve). Die gestrichelten Kurven geben die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen an.

	Diese Messung		Vorobiev		
\mathbf{TP}	$\overline{E}_{ m kin}$ /	FWHM /	$\overline{E}_{ m kin}$ /	FWHM /	
	${ m MeV}$	${ m MeV}$	${ m MeV}$	${ m MeV}$	
² H			$8,4{\pm}0,2$	$6,3{\pm}0,3$	
³ H			$8,4{\pm}0,2$	$6,5{\pm}0,3$	
⁴ He			$16,3{\pm}0,1$	$9,7{\pm}0,2$	
⁶ He			$11,5{\pm}0,2$	$9,5{\pm}0,3$	
⁸ He			$9,7{\pm}0,3$	$6,9{\pm}0,5$	
⁷ Li	$16,9\pm 1,7$	$14,7\pm 3,4$	$15,8{\pm}0,3$	$12,1\pm0,4$	
⁸ Li	$14,\!6\!\pm\!0,\!7$	$12,\!6\pm\!1,\!6$	$14,\!4{\pm}0,\!5$	$10,6{\pm}0,8$	
⁹ Li			$12,\!0\pm\!1,\!0$	$11,0{\pm}1,5$	
¹⁰ Be	$17,3\pm0,2$	$19,8{\pm}0,2$	$17,0\pm 0,4$	$15,7{\pm}0,9$	
$^{12}\mathrm{Be}$	$14,0\pm 1,0$	$15,4{\pm}2,0$			
$^{12}\mathrm{B}$	$20,2{\pm}0,5$	$18,6\pm 2,4$			
$^{13}\mathrm{B}$	$20,5{\pm}0,9$	$18,9{\pm}1,1$			
$^{14}\mathrm{B}$	$18,3{\pm}2,8$	$18,7{\pm}10,\!6$			
¹⁴ C	$24,8{\pm}0,5$	$24,5{\pm}0,7$			
$^{15}\mathrm{C}$	$21,7{\pm}0,4$	$23,1{\pm}0,9$			
$^{16}\mathrm{C}$	$20,4{\pm}0,7$	$21,0{\pm}1,6$			
$^{18}\mathrm{C}$	$20,2{\pm}1,8$	$17,1\pm 3,3$			
¹⁶ N	$26,1\pm 3,8$	$18,3\pm 3,6$			
^{18}N	$22,5{\pm}1,1$	$16,5{\pm}2,6$			
²⁰ O	$24,5\pm1,1$	$21,9\pm 1,4$			
$^{21}\mathrm{O}$	$24,4{\pm}2,6$	$21,8\pm 5,4$			

Tabelle 5.7: Experimentell bestimmte mittlere kinetische Energie $\overline{E}_{\rm kin}$ und Halbwertsbreite *FWHM* ternärer Teilchen aus der Reaktion ²³³U(n_{th},f). Die gemessenen Daten werden mit denen von [Vor 69] verglichen.



Abbildung 5.11: Energieverteilung von ¹⁸N (durchgezogene Kurve). Die gestrichelten Kurven geben die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen an.

In der Ionisationskammer am Massenseparator Lohengrin werden auch Teilchen nachgewiesen, die nicht aus der Spaltung stammen wie dies eben schon bei den fraglichen ¹⁵O-Ereignissen diskutiert wurde. Es ist möglich, daß Spaltfragmente an Nukliden aus der Abdeckfolie, Targethalterung oder dem Strahlrohr streuen und diese dabei herausschlagen. Diese Nuklide gelangen nach ihrer Separation durch das Massenspektrometer in die Ionisationskammer und werden registriert. Bei den nicht aus der Spaltung stammenden Teilchen handelt es sich um stabile Nuklide. Sie lassen sich anhand ihrer Energieverteilung von den ternären Teilchen unterscheiden. Abbildung 5.12 zeigt die Energieverteilung des stabilen Teilchens ¹⁶O. Es handelt sich nicht wie bei den ternären Teilchen um eine gaußförmige Verteilung. Je niedriger die Energie des stabilen Nuklids ist, desto größer ist seine Ausbeute. Dies ist eine Folge des Rutherford Streugesetzes.

Prinzipiell existieren neben den neutronenreichen instabilen ternären Teilchen auch stabile ternäre Teilchen mit gleicher Kernladung und Masse wie die gestreuten Teilchen. Diese werden gleichzeitig mit den gestreuten Nukliden detektiert. Dies erschwert den Nachweis auf ihre Herkunft als ternäre Teilchen. Die gaußförmigen Energieverteilungen der ternären Teilchen überlagern sich mit



Abbildung 5.12: Energieverteilung der einzelnen Ionenladungen des stabilen Nuklids $^{16}\mathrm{O}.$



Abbildung 5.13: Energieverteilung der einzelnen Ionenladungen des stabilen Nuklids $^{13}\mathrm{C}.$

den Energieverteilungen der gestreuten Nuklide. Da die Ausbeute der gestreuten Teilchen aber im allgemeinen ein Vielfaches der Ausbeute der ternären Teilchen beträgt, ist es nicht möglich, die ternären aus diesen großen Untergrund heraus zu identifizieren. Falls es sich bei dem gestreuten stabilen Teilchen um ein in der Natur selten vorkommendes Nuklid handelt, ist es eventuell möglich, die Ausbeute des entsprechenden ternären Teilchens zu bestimmen. In Abbildung 5.13 ist die Energieverteilung des stabilen Nuklids ¹³C gezeigt. Nur 1,1 % aller Kohlenstoffisotope sind ¹³C–Nuklide. Ein Vergleich mit der Ausbeute des ¹⁶O–Nuklids aus Abbildung 5.12 zeigt, daß der Untergrund der gestreuten Teilchen beim ¹³C-Nuklid um mehr als drei Größenordnungen niedriger ist. Ab einer Energie von etwa 25 MeV läßt sich bei der ¹³C-Energieverteilung ein Anteil von ternären Teilchen vermuten. In diesen hier beschriebenen Messungen wird nicht der Versuch unternommen, gestreute stabile Nuklide von ternären Teilchen zu trennen. Aus diesem Grund wurde nur nach instabilen ternären Teilchen gesucht. Eine Ausnahme bilden die Nuklide ⁷Li und ⁹Be. Bei beiden kommen keine gestreuten Teilchen vor, wie man an ihrer Energieverteilung erkennen kann. Dies liegt daran, daß diese Nuklide nicht in der Targetabdeckfolie, Targethalterung oder dem Strahlrohr vorkommen.

5.2.3 Ausbeuten

Die Ausbeuten der ternären Teilchen werden entsprechend der Thoriummessung bezüglich dem ternären Teilchen ¹⁰Be sowie bezüglich $10^4 \alpha$ -Teilchen normiert. Die Normierung bezüglich ¹⁰Be wird nach Gleichung 5.2 vorgenommen. Für die Bestimmung der auf α -Teilchen normierten Ausbeuten wird das ¹⁰Be-Nuklid gründlich vermessen. Diese aus dem Experiment bestimmte Ausbeute wird mit der auf $10^4 \alpha$ -Teilchen normierten Ausbeute von Vorobiev [Vor 69] $Y(^{10}\text{Be})_{\alpha} = 43\pm3$ gleichgesetzt. Für die Ausbeuten der ternären Teilchen gilt somit:

$$Y(A,Z)_{\alpha} = \frac{\int_{0}^{\infty} Y(A,Z,E_{\rm kin}) dE_{\rm kin}}{\int_{0}^{\infty} Y(A=10,Z=4,E_{\rm kin}) dE_{\rm kin}} \cdot Y({}^{10}{\rm Be})_{\alpha}$$
(5.3)
= $Y(A,Z)_{10}{}_{\rm Be} \cdot Y({}^{10}{\rm Be})_{\alpha}$

Es ist im Gegensatz zur Thoriummessung nicht erforderlich, die Ausbeute eines binären Fragments zu bestimmen.

	Diese Messung		Vorobiev		
\mathbf{TP}	Ausbeute $/$	Ausbeute $/$	Ausbeute $/$	Ausbeute /	
	$Y(^{10}{ m Be})$	$Y(lpha) \cdot 10^{-4}$	$Y(^{10}\mathrm{Be})$	$Y\!(lpha) \cdot 10^{-4}$	
² H			$(9,5\pm0,7)\cdot10^{-1}$	41 ± 2	
³ H			$10,7{\pm}0,9$	460 ± 20	
⁴ He			233 ± 12	10^{4}	
⁶ He			$_{3,2\pm0,3}$	137 ± 7	
⁸ He			$(8,4\pm1,1)\cdot10^{-2}$	$3,6{\pm}0,4$	
⁷ Li	$(1,2\pm0,3)\cdot10^{-1}$	$5,1{\pm}1,3$	$(8,6\pm0,8)\cdot10^{-2}$	$3,7{\pm}0,2$	
⁸ Li	$(4,5\pm0,6)\cdot10^{-2}$	$2,0{\pm}0,3$	$(4,2\pm0,5)\cdot10^{-2}$	$1,8{\pm}0,2$	
⁹ Li			$(8,4\pm1,3)\cdot10^{-2}$	$^{3,6\pm0,5}$	
⁹ Be			$(8,6\pm1,9)\cdot10^{-2}$	$3,7{\pm}0,8$	
$^{10}\mathrm{Be}$	1	43 ± 3	1	43 ± 3	
$^{12}\mathrm{Be}$	$(2,5\pm0,4)\cdot10^{-2}$	$1,1{\pm}0,2$			
$^{12}\mathrm{B}$	$(8,6\pm1,3)\cdot10^{-3}$	$(3,7\pm0,6)\cdot10^{-1}$			
¹³ B	$(1,4\pm0,3)\cdot10^{-2}$	$(6,2\pm1,3)\cdot10^{-1}$			
$^{14}\mathrm{B}$	$(3,1\pm1,9)\cdot10^{-4}$	$(1,4\pm0,8)\cdot10^{-2}$			
$^{15}\mathrm{B}$	$(5,6\pm2,5)\cdot10^{-5}$	$(2,4\pm1,1)\cdot10^{-3}$			
$^{14}\mathrm{C}$	$(2.6\pm0.1)\cdot10^{-1}$	$11,\!4\pm\!0,\!4$			
$^{15}\mathrm{C}$	$(5,6\pm0,2)\cdot10^{-2}$	$2,4{\pm}0,3$			
$^{16}\mathrm{C}$	$(4,9\pm0,4)\cdot10^{-2}$	$2,1{\pm}0,3$			
$^{18}\mathrm{C}$	$(1,2\pm0,3)\cdot10^{-3}$	$(5,2\pm1,2)\cdot10^{-2}$			
^{16}N	$(5,9\pm1,7)\cdot10^{-4}$	$(2,6\pm1,1)\cdot10^{-2}$			
^{18}N	$(1,1\pm0,2)\cdot10^{-3}$	$(4,7\pm0,9)\cdot10^{-2}$			
²⁰ O	$(1,6\pm0,2)\cdot10^{-2}$	$(7,1\pm0,8)\cdot10^{-1}$			
$^{21}\mathrm{O}$	$(8,0\pm2,2)\cdot10^{-4}$	$(3,4\pm1,0)\cdot10^{-2}$			
²⁴ Ne	$(9,3\pm5,0)\cdot10^{-5}$	$(4,0\pm 2,1)\cdot 10^{-3}$			
²⁷ Na	$\leq 1,5 \cdot 10^{-5}$	$\leq 6,4{\cdot}10^{-4}$			

Abbildung 5.14: Ausbeuten ternärer Teilchen normiert auf ¹⁰Be und 10⁴ α -Teilchen für die Reaktion ²³³U(n_{th},f). Der Wert für ²⁷Na gibt eine obere Grenze an.

In Tabelle 5.14 sind die bis heute bekannten Ausbeuten ternärer Teilchen aus der Reaktion ²³³U(n_{th},f) gezeigt. Bei den Nukliden ¹⁵B und ²⁴Ne wird zur Bestimmung der Ausbeute die mittlere Energie auf 19,0 MeV beziehungsweise 31,5 MeV gesetzt. Nach ²⁷Na wurde 15,3 Stunden lang bei einer Energie von 38,2 MeV und einer Ionenladung $q = 9e^+$ gesucht. In diesem Zeitraum konnte das Nuklid nicht nachgewiesen werden. Es läßt sich eine obere Grenze λ der Ausbeute angeben:

$$\lambda = -\frac{1}{T \cdot \epsilon} \cdot \ln(1 - CL) \tag{5.4}$$

 mit

$$T : Me \& dauer [h]$$

$$\epsilon = \epsilon_{q} \cdot \epsilon_{E} \cdot \epsilon_{Ab}$$

$$= 0,0124$$

$$CL = 0,683$$

CL (confidence level) gibt die Wahrscheinlichkeit an, daß die Ausbeute kleiner oder gleich dem Wert λ ist. Es wird CL=0.683 gesetzt. ϵ gibt das Verhältnis der Ausbeute der ²⁷Na-Nuklide mit einer kinetischen Energie von 38,2 MeV und Ionenladung 9 e^+ zur gesamten Ausbeute von ²⁷Na an. Das Verhältnis der Ausbeute der Ionenladung 9 e^+ zu der Ausbeute für alle Ionenladungen (bei $E_{\rm kin} = 38,2 \,{\rm MeV}$) wird durch $\epsilon_{\rm q}$ bezeichnet. Mit der Annahme $Z_{\rm eff} = 17$ (siehe Abschnitt 4.3) erhält man 0,4343. Bei Bestimmung des Verhältnisses der Ausbeute innerhalb des detektierten Energieintervalls zur gesamten Ausbeute $\epsilon_{\rm E}$ wird von einer mittleren Energie von 35 MeV und einer Halbwertsbreite von 30 MeV ausgegangen. Mit dieser Annahme erhält man $\epsilon_{\rm E} = 0.0513$. Der Abbrand des Targets wird durch $\epsilon_{\rm Ab}$ berücksichtigt. Mittels der Abbrandkurve des ²³³U-Targets ergibt sich $\epsilon_{\rm Ab}=0.5552$. Falls die obere Grenze auf 10⁴ α -Teilchen normiert wird, ergibt sich für das ²⁷Na Nuklid $\lambda = 6.4 \cdot 10^{-4}$.

In Abbildung 5.15 sind die ternären Ausbeuten dieser Messung zusammen mit denjenigen von Vorobiev graphisch dargestellt. Für diejenigen ternären Teilchen, deren Ausbeute bei beiden Messungen bestimmt wurde, ist eine gute Übereinstimmung zu beobachten. Es wird ein starker Abfall der Ausbeute mit der Masse des ternären Teilchens beobachtet. Der Verlauf der Ausbeuten zeigt einen geradeungerade Effekt bezüglich der Kernladung, ein schwächerer gerade-ungerade Effekt bezüglich der Neutronenzahl kann vermutet werden.



Abbildung 5.15: Vergleich der Ausbeuten ternärer Teilchen aus dieser Messung mit denjenigen von Vorobiev [Vor 69] für die Reaktion 233 U(n_{th},f). Der Pfeil für 27 Na gibt eine obere Grenze der Ausbeute an. Die Abszissenachse ist der besseren Übersicht wegen unterteilt.

Element	Isotop
Helium	$^{6}\mathrm{He}$
Lithium	⁷ Li , ⁹ Li
Beryllium	${}^{9}\text{Be}, {}^{10}\text{Be}, {}^{12}\text{Be}$
Bor	$^{12}{ m B}$, $^{14}{ m B}$, $^{15}{ m B}$
Kohlenstoff	$^{14}\mathrm{C}$, $^{15}\mathrm{C}$, $^{16}\mathrm{C}$, $^{17}\mathrm{C}$, $^{18}\mathrm{C}$
Stickstoff	$^{16}\mathrm{N}$, $^{17}\mathrm{N}$, $^{18}\mathrm{N}$, $^{20}\mathrm{N}$, $^{21}\mathrm{N}$
Sauerstoff	^{20}O , ^{21}O , ^{24}O
Fluor	$^{20}\mathrm{F}$, $^{21}\mathrm{F}$, $^{24}\mathrm{F}$
Neon	24 Ne, 27 Ne, 28 Ne
Natrium	27 Na, 28 Na, 30 Na
Magnesium	$^{28}{ m Mg}$ $^{30}{ m Mg}$
Aluminium	30 Al , 32 Al
Silizium	³³ Si

Tabelle 5.8: Bei der Reaktion 239 Pu $(n_{\rm th}, f)$ beobachtete ternäre Teilchen.

5.3 Die 239 Pu(n_{th},f) Reaktion

Das ²³⁹Pu–Nuklid besitzt mit 742,5 barn den größten Wirkungsquerschnitt aller drei untersuchten Aktinide. Aus diesem Grund ist es möglich, schwerere ternäre Teilchen mit noch kleineren Ausbeuten als bei der Thorium– oder Uranmessung zu bestimmen. Vor Durchführung der hier beschriebenen Messungen wurden ternäre Teilchen bis zum Nuklid ²⁰O beobachtet [Vor 75]. In diesem Experiment wird von ²⁰O ausgehend nach schwereren ternären Teilchen gesucht.

Im September 1997 wurde eine zweiwöchige Meßzeit durchgeführt.

5.3.1 Detektierte ternäre Teilchen

Die in dieser Messung beobachteten ternären Teilchen sind in Tabelle 5.8 gezeigt. Es ist gelungen, 36 unterschiedliche ternäre Teilchen im Bereich $6 \le A \le 33$ und $2 \le Z \le 14$ nachzuweisen. Davon sind 23 erstmals bei der Reaktion ²³⁹Pu(n_{th},f) detektiert worden.



Abbildung 5.16: Energieverteilung von ²⁰O (durchgezogene Kurve). Die gestrichelten Kurven geben die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen an.

5.3.2 Energieverteilungen

In der Diplomarbeit von R. Pfister [Pfi 98] wurden für vier ternäre Teilchen die Energieverteilungen bestimmt. Abbildung 5.16 zeigt die Energieverteilung des ternären Teilchens²⁰O. Die durchgezogene Kurve gibt die Energieverteilung an, die gestrichelten Kurven zeigen die Energieverteilungen der einzelnen Ionenladungen (zur Bestimmung der Energieverteilung siehe Abschnitt 5.1.2). In Tabelle 5.9 sind die erhaltenen mittleren kinetischen Energien \overline{E}_{kin} und Halbwertsbreiten FWHM gezeigt.

5.3.3 Ausbeuten

Die Ausbeuten der ternären Teilchen werden entsprechend der Thorium- und Uranmessung bezüglich dem ternären Teilchen ¹⁰Be sowie bezüglich $10^4 \alpha$ -Teilchen normiert. Die Normierung bezüglich ¹⁰Be wird nach Gleichung 5.2, die Normierung bezüglich $10^4 \alpha$ -Teilchen nach Gleichung 5.3 durchgeführt. Die Ausbeute des auf $10^4 \alpha$ -Teilchen normierten ¹⁰Be ist auf $Y(^{10}\text{Be})_{\alpha} = 49 \pm 1$ gesetzt [Vor 75]. In Tabelle 5.17 werden die in dieser Messung erhaltenen Ausbeuten mit denen nach [Vor 75] verglichen. Leider war es in [Pfi 98] aus Zeitgründen

	Diese Messung		Vorobiev	
\mathbf{TP}	$\overline{m{E}}_{ m kin}$ /	FWHM /	$\overline{E}_{ m kin}$ /	FWHM /
	${ m MeV}$	${ m MeV}$	${ m MeV}$	${ m MeV}$
$^{2}\mathrm{H}$			$^{8,7\pm0,1}$	$7,\!6\pm\!0,\!2$
³ Н			$^{8,4\pm0,1}$	$7,0\pm 0,2$
⁴ He			$15,8{\pm}0,1$	$10,3\pm 0,2$
⁶ He			$^{10,8\pm0,2}$	$10,9{\pm}0,2$
⁸ He			$^{8,0\pm0,2}$	$10,9{\pm}0,4$
⁷ Li			$14,5{\pm}0,2$	$13,\!6\pm\!0,\!3$
⁸ Li			$13,3{\pm}0,4$	$12,5{\pm}0,9$
⁹ Li			$12,0{\pm}0,3$	$12,0\pm 0,6$
⁹ Be			$16,2{\pm}1,2$	$16,\!6\pm\!1,\!5$
$^{10}\mathrm{Be}$	$16,4{\pm}0,1$	$19,2{\pm}0,6$	$16,4{\pm}0,2$	$16,\!3{\pm}0,\!3$
¹¹ Be			$15,9{\pm}0,6$	$14,1{\pm}1,0$
$^{12}\mathrm{Be}$			$12,9{\pm}1,8$	$13,\!6\pm\!2,\!5$
$^{14}\mathrm{C}$			$20,2{\pm}0,6$	$22,2{\pm}0,7$
$^{15}\mathrm{C}$			$18,\!6\pm\!3,\!3$	$19,7{\pm}7,1$
¹⁷ N	$24,2{\pm}0,9$	$17,\!6\!\pm\!0,\!9$		
^{20}O	$24,\!6\!\pm\!\!0,\!2$	$16,7{\pm}0,5$		
²⁴ Ne	$28,8{\pm}1,3$	$20,1{\pm}1,7$		

Tabelle 5.9: Experimentell bestimmte mittlere kinetische Energie $\overline{E}_{\rm kin}$ und Halbwertsbreite *FWHM* ternärer Teilchen aus der Reaktion ²³⁹Pu(n_{th},f). Die gemessenen Daten werden mit denen von [Vor 75] verglichen.

nicht möglich für alle beobachteten ternären Teilchen deren Energieverteilung und Ausbeute zu bestimmen.

Für ²¹F wurde zur Bestimmung der Ausbeute die mittlere Energie auf 28,7 MeV, für ²⁷Na auf 35,0 MeV gesetzt. Diese Werte wurden aus den Arbeiten [Dav 97, Hes 97, Bör 93] abgeschätzt. Im Falle von ³⁰Mg wird der Ansatz $\overline{E}_{kin} = 30,0$ MeV aus der Reaktion ²⁴¹Pu(n_{th},f) übernommen [Kös 98]. Für ³²Al wurde die mittlere Energie auf 36,8 MeV und die Halbwertsbreite auf 30,3 MeV gesetzt. Der Wert für ³⁴Si in Tabelle 5.17 gibt eine obere Grenze an. Nach 25,2 Stunden Meßdauer konnte kein Teilchen detektiert werden. Die obere Grenze von ³⁴Si wird mit den Annahmen $\overline{E}_{kin} = 39,8$ MeV, FWHM = 31,7 MeV und Z_{eff} = 10 nach Gleichung 5.4 berechnet.

In Abbildung 5.18 sind die in Tabelle 5.17 enthaltenen Ausbeuten aus der vorliegenden Arbeit sowie aus der Arbeit von [Vor 75] der besseren Übersicht halber graphisch dargestellt. Die Ausbeute des ¹⁰Be-Teilchens muß in beiden Arbeiten exakt übereinstimmen, da die vorliegende Messung auf die ¹⁰Be-Ausbeute aus [Vor 75] normiert wurde. Der Vergleich der ²⁰O-Ausbeuten zeigt eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den beiden Messungen. Desweiteren ist in Abbildung 5.18 deutlich der mit dieser Messung verbundene Fortschritt in der Ausbeutenbestimmung zu sehen. Alle ternären Teilchen mit einer Kernladung von mehr als acht sind in dieser Messung erstmals beobachtet worden. Es wurden um mehr als drei Größenordnungen kleinere Ausbeuten bestimmt als bisher in der Reaktion ²³⁹Pu(n_{th},f) bekannt waren.

	Diese Messung		Vorobiev		
TP	Ausbeute $/$	Ausbeute /	Ausbeute $/$	Ausbeute /	
	$Y(^{10}{ m Be})$	$Y\!(lpha) \cdot 10^{-4}$	$Y(^{10}{ m Be})$	$Y(lpha) \cdot 10^{-4}$	
² H			$1,4{\pm}0,1$	$69{\pm}2$	
³ H			$14,7{\pm}0,7$	720 ± 30	
⁴ He			204 ± 4	10^{4}	
⁶ He			$3,9{\pm}0,1$	192 ± 5	
⁸ He			$(1,8\pm0,1)\cdot10^{-1}$	$^{8,8\pm0,4}$	
⁷ Li			$(1,3\pm0,1)\cdot10^{-1}$	$_{6,5\pm0,2}$	
⁸ Li			$(6,5\pm0,6)\cdot10^{-2}$	$_{3,2\pm 0,3}$	
⁹ Li			$(1,1\pm0,1)\cdot10^{-1}$	$5,3{\pm}0,3$	
⁹ Be			$(1,0\pm0,1)\cdot10^{-1}$	$5,1{\pm}0,6$	
$^{10}\mathrm{Be}$	1	49 ± 1	1	$49{\pm}1$	
¹¹ Be			$(7,1\pm0,6)\cdot10^{-2}$	$_{3,5\pm0,3}$	
$^{12}\mathrm{Be}$			$(4,5\pm0,1)\cdot10^{-1}$	$2,2{\pm}0,5$	
¹¹ B			$(1,8\pm0,6)\cdot10^{-2}$	$0,9{\pm}0,3$	
$^{12}\mathrm{B}$			$(2,0\pm0,8)\cdot10^{-2}$	$1,0\pm 0,4$	
$^{13}\mathrm{B}$			$(2,7\pm0,8)\cdot10^{-2}$	$1,3\pm 0,4$	
$^{14}\mathrm{B}$			$(4,1\pm0,2)\cdot10^{-3}$	$0,2{\pm}0,1$	
$^{14}\mathrm{C}$			$(2,9\pm0,1)\cdot10^{-1}$	$14{\pm}0,\!6$	
$^{15}\mathrm{C}$			$(7,1\pm2,7)\cdot10^{-2}$	$3,5{\pm}1,3$	
$^{16}\mathrm{C}$			$(7,1\pm3,3)\cdot10^{-2}$	$3,5{\pm}1,6$	
¹⁷ N	$(4,0\pm0,2)\cdot10^{-3}$	$(1,9\pm0,1)\cdot10^{-1}$			
²⁰ O	$(1,4\pm0,1)\cdot10^{-2}$	$(6,8\pm0,3)\cdot10^{-1}$	$(1,6\pm0,8)\cdot10^{-2}$	$(8,0\pm4,0)\cdot10^{-1}$	
$^{21}\mathrm{F}$	$(5,2\pm0,8)\cdot10^{-4}$	$(2,5\pm0,4)\cdot10^{-2}$			
²⁴ Ne	$(5,0\pm0,7)\cdot10^{-4}$	$(2,5\pm0,3)\cdot10^{-2}$			
²⁷ Na	$(4,1\pm1,1)\cdot10^{-5}$	$(2,0\pm0,5)\cdot10^{-3}$			
³⁰ Mg	$(5,8\pm3,0)\cdot10^{-5}$	$(2,8\pm1,5)\cdot10^{-3}$			
³² Al	$(3,3\pm3,3)\cdot10^{-6}$	$(1,6\pm1,6)\cdot10^{-4}$			
³⁴ Si	$\leq 7, 1 \cdot 10^{-6}$	$\leq 3,5.10^{-4}$			

Abbildung 5.17: Ausbeuten ternärer Teilchen normiert auf ¹⁰Be und 10⁴ α -Teilchen für die Reaktion ²³⁹Pu(n_{th},f). Der Wert für ³⁴Si gibt eine obere Grenze an.



Abbildung 5.18: Vergleich der Ausbeuten ternärer Teilchen aus dieser Messung mit denjenigen von Vorobiev [Vor 75] für die Reaktion $^{239}Pu(n_{th},f)$. Die Abszissenachse ist der besseren Übersicht wegen unterteilt.

Kapitel 6

Diskussion

6.1 Ternäre Teilchen

Bis zum heutigen Zeitpunkt (Stand Ende 1998) sind bei durch thermische Neutronen induzierter Spaltung über 70 unterschiedliche ternäre Teilchen beobachtet worden. In Abbildung 6.1 ist ein Ausschnitt der Nuklidkarte zu sehen. Im Experiment detektierte ternäre Teilchen sind schwarz gekennzeichnet, noch nicht im Experiment erhaltene sind weiß gekennzeichnet. Das schwerste bis heute entdeckte ternäre Teilchen ist ³⁵Si [Hes 97]. Da die Ausbeute stark mit der Kernladung und/oder Masse des ternären Teilchens abfällt, ist es mit heute zugänglichen Techniken noch nicht gelungen, schwerere Teilchen zu detektieren. Sämtliche in Abbildung 6.1 als beobachtet gekennzeichnete ternäre Teilchen mit einer Kernladung von neun und mehr wurden am Massenseparator Lohengrin des Instituts Laue-Langevin detektiert. Nur dort erhält man den benötigten hohen Neutronenfluß, um bei den geringen Ausbeuten noch Teilchen in akzeptablen Meßzeiten eindeutig identifizieren zu können. Da am Massenseparator Lohengrin die meisten stabilen ternären Teilchen nicht vom Untergrund der gestreuten Teilchen unterschieden werden können (siehe Abschnitt 5.2.2), sind in Abbildung 6.1 bei großen Kernladungen keine als beobachtet gekennzeichnet. Die Nuklide ⁵He und ⁷He zerfallen prinzipiell sofort durch Aussendung eines Neutrons in ⁴He beziehungsweise ⁶He. Direkt lassen sie sich nicht nachweisen. In den Neutronenwinkelverteilungen ternärer Spaltungen sind aber Hinweise auf ternäre ⁵He– beziehungsweise ⁷He–Nuklide gefunden worden [Mut 98]. Man fand eine Erhöhung der Neutronenausbeute in Flugrichtung der ternären ⁴He- und ⁶He-Nuklide. Dies könnte durch die Zerfälle ${}^{5}\text{He} \rightarrow {}^{4}\text{He} + n$ sowie ${}^{7}\text{He} \rightarrow {}^{6}\text{He} + n$



Abbildung 6.1: Ausschnitt aus der Nuklidkarte. Bis Ende 1998 beobachtete ternäre Teilchen sind als schwarze Kästchen dargestellt, noch nicht beobachtete als weiße Kästchen.

zustande kommen. Mit dieser Annahme ergibt sich für Californium, daß etwa 23 % aller α -Teilchen aus einem ⁵He-Zerfall und etwa 21 % aller ⁶He-Teilchen aus einem ⁷He-Zerfall stammen [Mut 98]. Hinweise auf das ternäre Teilchen ⁸Be, welches mit einer Halbwertszeit von etwa $2,3\cdot10^{-16}$ s zerfällt, sind in [And 69] zu finden. In dieser Arbeit wurde durch Koinzidenzmessung von zwei α -Teilchen, welche einen kleinen Winkel zueinander besaßen, darauf zurückgeschlossen, daß sie durch im Flug zerfallendem ⁸Be entstanden sind. Während in [And 69] nur 33 dieser Ereignisse detektiert worden sind ist es in einem neuen Experiment gelungen, etwa 10⁵ Vierfachkoinzidenzen (zwei Fragmente und zwei leichte geladene Teilchen) zu beobachten [Jes 99]. Ein Großteil diese Koinzidenzen wird auf den Zerfall von ⁸Be in zwei α -Teilchen zurückgeführt.

6.2 Energieverteilungen

Die Verteilungen der kinetischen Energien der ternären Teilchen lassen sich durch Gaußverteilungen beschreiben. Die Momente der Gaußverteilungen (Mittelwert und Varianz) sind für jedes ternäre Teilchen charakteristisch, aber alle Verteilungen weisen nicht verschwindende Ausbeuten bis hin zur kleinstmöglichen kinetischen Energie Null aus. Lediglich die Energieverteilung der ternären α -Teilchen läßt sich nicht durch eine Gaußverteilung beschreiben. Sie besitzt bei niedrigen Energien eine erhöhte Ausbeute bezüglich einer gaußförmigen Verteilung. Diese Asymmetrie der Verteilung wurde erstmals in der spontanen Spaltung von 252 Cf nachgewiesen [Lov 74]. Solch eine Erhöhung der Ausbeute für α -Teilchen wird bei allen Spaltsystemen beobachtet. Für ²⁵²Cf werden 9 % mehr ternäre α -Teilchen erhalten als aufgrund einer gaußförmigen Extrapolation von hohen zu niedrigen Energien zu erwarten wäre. Bei den Reaktionen $^{233}U(n_{th},f)$ und 239 Pu(n_{th},f) werden 6 % mehr α -Teilchen beobachtet [Wag 86]. Die Ursache dieser niederenergetischen Erhöhung der Ausbeute kann nicht mit dem Eingangskanal zusammenhängen, da die Erhöhung sowohl in der spontanen als auch in der induzierten Spaltung beobachtet wird. Eine mögliche Erklärung ist der Zerfall des ternären ⁵He-Nuklids in ein α -Teilchen und ein Neutron [Wag 91]. ⁵He ist nicht stabil, es zerfällt nach seiner Entstehung sofort und wird nicht beobachtet (siehe Abschnitt 6.1). Für die Reaktion $^{233}U(n_{th},f)$ wird erwartet, daß 5 % aller ternären α -Teilchen aus dem Zerfall des ⁵He-Nuklids stammen [Hal 71]. Diese zusätzlichen α -Teilchen könnten die beobachtete Erhöhung der Ausbeute von 6 %



Abbildung 6.2: Mittlere kinetische Energien ternärer Teilchen aus der Reaktion 233 U(n_{th},f). Die mittleren Energien der H-, He- und Li-Isotope sind aus [Vor 69], alle anderen wurden in dieser Messung bestimmt.

bezüglich einer gaußförmigen Energieverteilung erklären. Diese Annahme wird auch durch die Beobachtung einer leichten Verbreiterung der Winkelverteilung niederenergetischer ternärer α -Teilchen unterstützt [Mut 96a]. Im Falle der Reaktion ²⁵²Cf stammen etwa 23 % aller α -Teilchen aus einem ⁵He-Zerfall [Mut 98]. Die beobachtete Erhöhung der Ausbeute von 9 % müßte deutlich größer ausfallen. Allerdings ist die angegebene Abweichung von 9 % gegenüber einer reinen Gaußverteilung mit einem großen Unsicherheitsfaktor behaftet. Neben der Erklärungsmöglichkeit der Ausbeuteerhöhung durch "sekundäre α -Teilchen" gibt es noch den Versuch, diese durch eine Reflektion von α -Teilchen an den entstehenden Fragmentoberflächen zu erklären [Mut 96a]. Davon abgesehen gibt es aber a priori keinen Grund, daß die Energieverteilung der α -Teilchen perfekt gaußförmig sein muß.

6.2.1 Mittlere Energien

In dieser Arbeit wurden bei den Reaktionen ²²⁹Th (n_{th},f) und ²³⁹Pu (n_{th},f) Energieverteilungen von jeweils vier sowie bei der Reaktion ²³³U (n_{th},f) von 15 verschiedenen Nukliden bestimmt. In Abbildung 6.2 sind die mittleren kinetischen Energien der ternären Teilchen aus der Reaktion $^{233}U(n_{th},f)$ dargestellt. Die mittleren Energien der H-, He- und Li-Isotope wurden von Vorobiev [Vor 69] bestimmt, während alle anderen aus dieser Messung stammen. Es ist zu beobachten, daß mit wachsender Kernladung die mittlere Energie $E_{\rm kin}$ des ternären Teilchens zunimmt, während sie bei konstanter Kernladung mit steigender Masse abnimmt. Bei größeren Kernladungen der ternären Teilchen — und damit kleineren Kernladungen der Fragmente — nimmt die Coulombenergie des ternären Systems zu. Die repulsive Kraft der Spaltfragmente auf das ternäre Teilchen wird aufgrund des größeren Coulombfeldes stärker. Somit wird die mittlere kinetische Energie des Teilchens höher. Falls man von der Annahme ausgeht, daß die unterschiedlichen ternären Teilchen ähnliche Anfangsbedingungen bei ihrer Entstehung am Szissionspunkt besitzen, kann auch die beobachtete Abnahme von \overline{E}_{kin} mit steigender Masse bei konstanter Kernladung qualitativ verstanden werden. Bei einer festen kinetischen Anfangsenergie ternärer Teilchen bewegen sich schwere bei gleicher Kernladung Z nach der Spaltung langsamer als leichte. Die Spaltfragmente sind somit von den schweren Teilchen nach einem gleichem Zeitraum räumlich weiter entfernt und beschleunigen diese aufgrund der größeren Entfernung nicht mehr so stark. Ihre mittlere kinetische Energie \overline{E}_{kin} nimmt deshalb ab [Wag 91].

In Abbildung 6.3 und 6.4 ist die Abhängigkeit der mittleren kinetischen Energie \overline{E}_{kin} ternärer Teilchen vom Spaltungsparameter Z^2/A gezeigt. Der besseren Übersicht halber sind in Abbildung 6.3 nur ternäre Teilchen mit geraden Kernladungen und in Abbildung 6.4 nur solche mit ungeraden Kernladungen eingetragen. Bei den Spaltsystemen handelt es sich um die mit thermischen Neutronen induzierte Spaltung der Kerne ²²⁹Th, ²³³U, ²³⁵U, ²³⁹Pu, $^{241}{\rm Pu},~^{245}{\rm Cm},~^{243}{\rm Am}$ und $^{249}{\rm Cf}.$ Die $\overline{E}_{\rm kin}$ stammen aus dieser Arbeit sowie aus [Bau 92, Dav 98, Hes 97, Kös 98, Vor 69, Vor 75]. Für leichte ternäre Teilchen ist in Abbildung 6.3 und 6.4 keine oder nur eine sehr geringe Abhängigkeit der mittleren kinetischen Energie vom spaltenden System zu erkennen. Die mittlere kinetische Energie des α -Teilchens beträgt beispielsweise unabhängig vom spaltenden System immer (15.9 ± 0.2) MeV. Dieser Zahlenwert gilt auch bei allen bis heute untersuchten Spontanspaltern. Die mittlere kinetische Energie \overline{E}_{kin} der schweren ternären Teilchen, wie z.B. diejenige der in Abbildung 6.3 gezeigten ¹⁴C- und ²⁰O-Isotope, scheinen um einen von Z^2/A unabhängigen Wert zu schwanken. Diese Schwankungen könnten aufgrund der unterschiedlichen Aus-



Abbildung 6.3: Mittlere kinetische Energie ternärer Teilchen mit gerader Kernladung in Abhängigkeit des Spaltungsparameters für mit thermische Neutronen induzierte Spaltungen.

wertemethoden zustande kommen. Bei den leichten ternären Teilchen sind diese Schwankungen nicht zu beobachten, da ihre Ausbeuten deutlich größer sind und es sich im Gegensatz zu den schweren ternären Teilchen bei den \overline{E}_{kin} um über viele unterschiedliche Messungen und damit Auswertemethoden gemittelte Werte handelt. Somit läßt sich der Schluß ziehen, daß für alle ternären Teilchen die mittlere kinetische Energie \overline{E}_{kin} nicht vom Compoundsystem abhängt. Dies läßt sich unter der Annahme verstehen, daß die Anfangsbedingungen der ternären Teilchen, die zu ihren kinetischen Energien führen, unabhängig vom Compoundkern sind. Diese Anfangsbedingungen sind der Startimpuls und der "Geburtsort" des ternären Teilchens, d.h. eine Zelle des Teilchens in seinem Phasenraum. Mit dem Ansatz, daß die Anfangsbedingungen (Phasenraumverteilungen) keine Funktion des Spaltungsparameters sind, muß nur noch gezeigt werden, daß beim Übergang von ²³⁴U* nach ²⁵⁰Cf* das zweifellos größere Coulombfeld keinen Einfluß auf das ternäre Teilchen hat. Dazu betrachte man die Beschleunigung ader Spaltfragmente aufgrund des Coulombfeldes. Der Einfachheit halber nehme man symmetrische Spaltung an. In diesem Fall gilt für die Beschleunigung der



Abbildung 6.4: Mittlere kinetische Energie ternärer Teilchen mit ungerader Kernladung in Abhängigkeit des Spaltungsparameters für mit thermische Neutronen induzierte Spaltungen.

Fragmente :

$$a_{\rm FF} = \frac{F_{\rm C}}{\frac{A}{2}} \sim \frac{(\frac{Z}{2})^2}{(\frac{A}{2})^{2/3}} \cdot \frac{1}{\frac{A}{2}} \sim \frac{Z^2}{A^{5/3}}$$

A und Z geben die Massen- und Kernladungszahl des Compoundkernes an. Der Index FF steht für das Spaltfragment. Für die Reaktion ²³³U(n_{th},f) ergibt sich 0,756, während in der Reaktion ²⁴⁹Cf(n_{th},f) 0,768 erhalten wird. Dies bedeutet, daß die Spaltfragmente beim Californium stärker beschleunigt werden als beim Uran. Es sei darauf hingewiesen, daß die hier bestimmte Beschleunigung der Fragmente nur eine grobe Näherung darstellt. Eine genauere Bestimmung muß mittels Trajektorienrechnung erfolgen, bei der alle drei geladenen Teilchen betrachtet werden. Solch umfangreiche Rechnungen wurden unter anderen von W. Baum [Bau 92] durchgeführt. Es ist also zum einen beim Californium die Coulombkraft auf das ternäre Teilchen größer, zum anderen wirkt diese aber aufgrund der größeren Beschleunigung der Fragmente kürzer. Wenn sich diese beiden Effekte kompensieren wirkt sich das größere Coulombfeld beim Übergang von ²³⁴U* nach ²⁵⁰Cf* nicht auf das ternäre Teilchen aus. Es ergibt sich somit



Abbildung 6.5: Halbwertsbreiten ternärer Teilchen der Reaktion $^{233}U(n_{th},f)$ in Abhängigkeit von ihrer Massenzahl. Die Halbwertsbreiten der H-, He- und Li-Isotope sind aus [Vor 69], alle anderen sind bei dieser Messung bestimmt worden.

die beobachtete Unabhängigkeit der mittleren kinetischen Energie der ternären Teilchen vom Spaltungsparameter.

6.2.2 Halbwertsbreiten

Die Halbwertsbreiten FWHM der Energieverteilungen sind auf die leicht unterschiedlichen kinetischen Anfangsenergien ternärer Teilchen zurückzuführen. Diese Unterschiede werden durch das Coulombfeld verstärkt. In Abbildung 6.5 sind die FWHM der ternären Teilchen der Reaktion ²³³U(n_{th},f) in Abhängigkeit ihrer Massenzahl A zu sehen. Die Halbwertsbreiten der H–, He– und Li–Isotope sind aus [Vor 69], alle anderen sind bei dieser Messung bestimmt worden. Es ist ein deutlicher Anstieg der Halbwertsbreite mit der Kernladung zu beobachten, während für konstante Kernladung die Halbwertsbreite mit größerer Massenzahl sinkt. Dieses Verhalten ist analog dem der mittleren kinetischen Energien. Das Coulombfeld verstärkt kleine Unterschiede in den kinetischen Anfangsenergiespektren der Teilchen. Diese Verstärkung ist proportional zur Kernladung. Somit muß die *FWHM* mit der Kernladung des ternären Teilchens ansteigen.



Abbildung 6.6: Halbwertsbreiten der Energieverteilung ternärer Teilchen mit gerader Kernladung in Abhängigkeit des Spaltungsparameters für mit thermische Neutronen induzierte Spaltung.



Abbildung 6.7: Halbwertsbreiten der Energieverteilung ternärer Teilchen mit ungerader Kernladung in Abhängigkeit des Spaltungsparameters für mit thermische Neutronen induzierte Spaltung.

Abbildungen 6.6 und 6.7 zeigen die Halbwertsbreiten FWHM ternärer Teilchen in Abhängigkeit des Spaltungsparameters Z^2/A . Analog wie bei den mittleren Energien sind die ternären Teilchen mit geraden und ungeraden Kernladungen separat dargestellt. Die FWHM sind sehr empfindlich bezüglich den experimentellen Bedingungen sowie des Energieintervalls, das zur Anpassung der Gaußverteilung an die Datenpunkte der Energieverteilung benützt wird. Deshalb muß der Vergleich von Halbwertsbreiten aus unterschiedlichen Experimenten vorsichtig durchgeführt werden. Die FWHM der leichten ternären Teilchen steigen nur schwach mit dem Spaltungsparameter Z^2/A an. Die FWHM der schwereren Teilchen zeigen ein analoges Verhalten wie bei den mittleren kinetischen Energien. Sie scheinen ebenfalls um einen von Z^2/A unabhängigen Wert zu schwanken. Dieses Verhalten ist in voller Übereinstimmung mit dem Ansatz im vorherigen Abschnitt, daß die Anfangsbedingungen der ternären Teilchen, die zu ihren kinetischen Energieverteilungen führen, unabhängig vom Compoundkern sind.

6.2.3 Verhältnis Halbwertsbreiten zu mittleren Energien

In Abbildung 6.8 ist das Verhältnis $FWHM/\overline{E}_{\rm kin}$ ternärer Teilchen der Reaktion ²³³U(n_{th},f) zu sehen. Teilchen mit geraden Kernladungszahlen werden durch volle Datenpunkte symbolisiert, während diejenigen mit ungeraden Kernladungszahlen durch nicht ausgefüllte Datenpunkte dargestellt werden. Es fällt auf, daß unabhängig von der Massenzahl des ternären Teilchens das Verhältnis $FWHM/\overline{E}_{\rm kin}$ etwa zwischen 0,8 und 1,0 liegt. Dies bedeutet, daß sich die Energieverteilung der schweren ternären Teilchen nicht nur einfach mit der mittleren kinetischen Energie $\overline{E}_{\rm kin}$ zu hohen Energien verschiebt, sondern gleichzeitig mit $\overline{E}_{\rm kin}$ wird auch entsprechend die Halbwertsbreite größer. Der niederenergetische Ausläufer der Energieverteilung erreicht damit immer mit einer nicht verschwindenden Ausbeute $E_{\rm kin} = 0$ MeV. Da in der Spaltung nur ternäre Teilchen eine sehr kleine beziehungsweise verschwindende kinetische Energie besitzen können, ist dies ein deutlicher Hinweis darauf, daß auch die schweren gemessenen Teilchen aus der ternären und nicht binären Spaltung stammen.

Schaut man sich den Verlauf in Abbildung 6.8 genauer an, so sieht man einen deutlichen gerade-ungerade Effekt in den Kernladungen. Das Verhältnis $FWHM/\overline{E}_{kin}$ liegt bei den ternären Be-, C- und O-Isotopen deutlich höher als bei den H-, Li-, B- und N-Isotopen. Lediglich die He-Isotope bilden hier eine Ausnahme. Die ⁶He- und ⁸He-Nuklide besitzen ein etwa gleich großes $FWHM/\overline{E}_{kin}$ -



Abbildung 6.8: Verhältnis von Halbwertsbreiten zu mittleren kinetischen Energien $FWHM/\overline{E}_{kin}$ ternärer Teilchen der Reaktion ²³³U(n_{th},f).

Verhältnis wie die sie umgebenden H– und Li–Isotope. Nur das ternäre α – Teilchen zeigt einen deutlich abweichenden $FWHM/\overline{E}_{\rm kin}$ –Wert bezüglich dem allgemeinen Trend, sein Wert liegt sogar niedriger als bei den H– und Li–Isotopen. Neben der niederenergetischen Erhöhung der Ausbeute bezüglich einer gaußförmigen Energieverteilung ist dies ein weiterer Hinweis darauf, daß das ternäre α – Teilchen sich nicht wie die anderen ternären Teilchen verhält.

6.3 Ausbeuten

6.3.1 Vergleich mit berechneten Ausbeuten

In Abbildung 6.9 und 6.10 sind die experimentell bestimmten und nach dem Halpern-Modell berechneten Ausbeuten ternärer Teilchen aus der Reaktion 233 U(n_{th},f) in Abhängigkeit ihrer Massenzahl *A* dargestellt. Die Berechnung der Ausbeuten erfolgte in den beiden Abbildungen unterschiedlich. Zum Vergleich sind neben den in diesen Messungen bestimmten Ausbeuten noch diejenigen von Vorobiev et al. [Vor 69] dargestellt. Der Wert für ²⁷Na ist eine obere Grenze, d.h. dieses Nuklid wurde nicht detektiert. Es ist ein deutlicher gerade-ungerade



Abbildung 6.9: Vergleich der experimentellen Ausbeuten mit nach dem Halpern-Modell berechneten Ausbeuten. Der Wert für ²⁷Na ist eine obere Grenze. Der berechnetete Wert für ²⁴Ne fällt mit dem experimentellen Wert zusammen. Es wurden gewichtete Energiekosten verwendet. Das schwere Fragment stellt das Mutterfragment des ternären Teilchens dar.



Abbildung 6.10: Vergleich experimenteller Ausbeuten der Reaktion 233 U(n_{th},f) mit nach dem Halpern-Modell berechneten Ausbeuten. Bei den Berechnungen der Ausbeuten wurde 132 Sn als schweres Fragment gesetzt.

Effekt in den Kernladungen zu beobachten. Die Ausbeuten der He-, Be-, C- und O-Isotope sind deutlich erhöht gegenüber denen der H-, Li-, B- und N-Isotope. Zusätzlich läßt sich ein schwächerer gerade-ungerade Effekt in der Neutronenzahl beobachten. Diese beobachteten Effekte in den Ausbeuten lassen sich durch das Halpern-Modell (siehe Abschnitt 2.2.1) erklären. Die Energiekosten $E_{\rm C}$, die die Ausbeuten bestimmen, hängen von den Bindungsenergien der ternären Teilchen bezüglich ihrer Mutterfragmente ab. Da die Bindungsenergie stark von geraden beziehungsweise ungeraden Kernladungen sowie Neutronenzahlen abhängig ist, kommt es zu den entsprechenden Änderungen in den Ausbeuten.

In Abbildung 6.9 wurden bei der Berechnung der Ausbeuten gewichtete Energiekosten verwendet (siehe Abschnitt 2.2.1). Die allgemeine Massenabhängigkeit der Ausbeuten wird gut reproduziert, während der gerade-ungerade Effekt deutlich unterschätzt wird. Die berechneten Ausbeuten beschreiben die experimentellen Daten bis auf etwa eine Größenordung genau.

In Abbildung 6.10 wurde bei der Berechnung der Energiekosten als schweres Fragment ¹³²Sn angesetzt. Das leichte Fragment stellt das Mutterfragment des ternären Teilchens dar. Es ergibt sich für Teilchen mit $Z \leq 8$ eine bessere



Abbildung 6.11: Vergleich der experimentellen Ausbeuten mit nach dem Halpern-Modell berechneten Ausbeuten. Bei der Berechnung der Ausbeuten wurden die Energiekosten gewichtet. Das schwere Fragment wurde als Mutterfragment des ternären Teilchens angenommen.

Ubereinstimmung zwischen experimentellen Daten und berechneten Ausbeuten als bei der Verwendung der gewichteten $E_{\rm C}$ wie in Abbildung 6.9. Bei ternären Teilchen mit Kernladungen größer acht nimmt allerdings die Differenz zwischen Experiment und Modellrechnung immer stärker zu.

In den Abbildungen 6.11 und 6.12 sind die Ausbeuten ternärer Teilchen der Reaktion ²³⁹Pu(n_{th} ,f) gezeigt. Die experimentellen Daten stammen von Vorobiev et al. [Vor 75] sowie aus dieser Messung. Wiederum sind in den Abbildungen nach dem Halpern-Modell berechnete Ausbeuten eingetragen. In Abbildung 6.11 sind die berechneten Ausbeuten mit gewichteten Energiekosten bestimmt worden, während in Abbildung 6.12 zur Berechnung als schweres Fragment ¹³²Sn angesetzt wurde. Die Ausbeute von ²⁴Ne wurde auf ihren experimentellen Wert gesetzt. Die Ausbeuten der schweren ternären Teilchen ²⁷Na, ³⁰Mg und ³²Al werden in Abbildung 6.12 fast identisch wiedergegeben. Bei den H-, He- und Li-Isotopen ist die Beschreibung mit dem Ansatz von ¹³²Sn als schweres Fragment ebenfalls besser. Für ternäre Teilchen mit einer "mittleren" Massenzahl (Beryllium- bis Fluorisotope) ist im Gegensatz dazu der Unterschied zwischen gerechneten und



Abbildung 6.12: Vergleich der experimentellen Ausbeuten mit nach dem Halpern-Modell berechneten Ausbeuten. Bei den berechneten Ausbeuten wurde ¹³²Sn als schweres Fragment gesetzt. Das leichte Fragment stellt das Mutterfragment des ternären Teilchens dar.

experimentellen Ausbeuten beim gewichteten Ansatz kleiner.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß die nach dem Halpern-Modell berechneten Ausbeuten i.a. besser als eine Größenordnung genau die experimentellen Daten beschreiben. Dies gelingt von einer Ausbeute von 10^4 für die ternären α -Teilchen bis etwa 10^{-4} für ³²Al, also über einen Bereich von etwa acht Größenordnungen. Auch die bereits in Abschnitt 2.2.1 beschriebenen Eigenschaften, daß das Modell jeweils das Isotop mit der größten Ausbeute sowie den gerade-ungerade Effekt bezüglich den Neutronenzahlen gut beschreibt, läßt sich bei den hier untersuchten Reaktionen beobachten. Das Rubchenya- oder Pik-Pichak-Modell beschreibt die in der vorliegenden Arbeit bestimmten Ausbeuten etwa gleich gut wie das Halpern-Modell. Keine der beiden im Halpern-Modell betrachteten Berechnungsmöglichkeiten der Ausbeuten zeichnet sich besonders aus. Somit deutet das Halpern-Modell insbesondere nicht auf eine bevorzugte Bildung des schweren Fragments ¹³²Sn in der ternären Spaltung hin.

Dies ist umso bemerkenswerter als man bei der Betrachtung der mittleren Neutronenzahlen in der binären und ternären Spaltung zu einem entgegenge-


Abbildung 6.13: Mittlere Anzahl emittierter Neutronen als Funktion der Fragmentmassen für die Reaktion ²⁵²Cf(s.f.). Durchgezogene Linie: ternäre Spaltung mit Emission eines Be-Isotops, gestrichelte Linie: binäre Spaltung [Mut 96b].

setzten Ergebnis kommt. In Abbildung 6.13 ist die mittlere Anzahl der emittierten Neutronen $\overline{\nu}$ für ternäre Spaltung unter Emission eines Be-Isotops in Abhängigkeit der Fragmentmassen für die Spontanspaltung von ²⁵²Cf wiedergegeben [Mut 96b]. Die Anzahl der Neutronen $\overline{\nu}$ ist ein Maß für die mittlere Anregungsenergie der Fragmente. Die gestrichelte Linie gibt die mittlere Anzahl der emittierten Neutronen für binäre Spaltung an. Die Änderung der mittleren Anregungsenergien der Fragmente bei Emission eines Be-Isotops läßt sich in Abbildung 6.13 beim Vergleich von ternärer und binärer Neutronenemission ablesen.

Für schwere Fragmente in einem Massenbereich von etwa $132 \leq A_{\rm HF} \leq 142$ läßt sich kein Unterschied zwischen ternärer und binärer Spaltung erkennen. Für die zu ihnen komplementären leichten Fragmente im Bereich $110 \leq A_{\rm LF} \leq 120$ wird im Gegensatz dazu eine große Differenz zwischen der Anzahl der emittierten Neutronen in der binären und ternären Spaltung beobachtet. Die Anregungsenergie dieser Fragmente nimmt bei Emission von Beryllium stark ab. Dies ist ein deutlicher Hinweis darauf, daß die Anregungsenergie, die am Szissionspunkt ganz überwiegend als Deformationsenergie vorliegt, zum Herauslösen des ternären Teilchens benützt wird. Desweiteren bedeutet dies, daß die Be-Isotope bevorzugt von leichten Fragmenten im Bereich $110 \leq A_{\rm LF} \leq 120$ emittiert werden und nicht von den komplementären schweren Fragmenten im Massenbereich $132 \leq A_{\rm HF} \leq 142.$ Der im Halpern–Modell durchgeführte Ansatz von $^{132}{\rm Sn}$ als schwerem Fragment und Emission des ternären Teilchens vom komplementären leichten Fragment entspricht im Grenzfall diesem experimentellen Befund (siehe Abbildung 6.10 und 6.12). Daß sich mit diesem Ansatz die Ausbeuten nicht besser beschreiben lassen als bei einer Gewichtung nach den binären Massenund Kernladungsverteilungen könnte in der Einfachheit des Modells begründet sein. Ein weiterer Grund ist eventuell der Zerfall von primären in sekundäre ternäre Teilchen. In Abschnitt 6.1 wurde darauf hingewiesen, daß ca. 23 % aller ⁴He–Teilchen sekundäre ternäre Teilchen darstellen. Sie stammen aus dem Zerfall von ⁵He. Die experimentell beobachteten Ausbeuten sind eine Überlagerung von primären und sekundären Teilchen. Bei einem Vergleich mit berechneten Ausbeuten sollte daher der Beitrag der im Experiment auftretenden sekundären ternären Teilchen berücksichtigt werden. Die Beiträge der sekundären Teilchen scheinen aber bei weitem nicht ausreichend zu sein, um die großen Diskrepanzen zwischen Experiment und Modell zu erklären.

Andeutungsweise läßt sich in Abbildung 6.13 für leichte Fragmente mit etwa $A_{\rm LF} \leq 95$ der analoge Effekt wie für $132 \leq A_{\rm HF} \leq 142$ insofern beobachten, als in diesem Massenbereich kein Unterschied zwischen binärer und ternärer Spaltung bezüglich Neutronenemission vorhanden zu sein scheint. Für die komplementären schweren Fragmente mit $A_{\rm HF} \geq 157$ zeigt sich dagegen eine große Differenz zwischen der Anzahl der emittierten Neutronen in der binären und ternären Spaltung. Hier scheint es so, daß die Be-Isotope bevorzugt vom schweren Fragment emittiert werden und nicht vom komplementären leichten Fragment. Dafür könnte das in der Region $A_{\rm LF} \leq 95$ liegende ⁸²Ge verantwortlich sein, da es aufgrund der magischen Neutronenzahl von 50 besonders stabil ist. Dieser Effekt ist aber deutlich schwächer als derjenige in der Umgebung des doppeltmagischen ¹³²Sn und im Rahmen der Fehler in Abbildung 6.13 nicht eindeutig.

6.3.2 Abhängigkeit vom Compoundsystem

In Abbildung 6.14 sind die Ausbeuten ternärer Teilchen für verschiedene mit thermische Neutronen induzierte Spaltreaktionen gezeigt. Neben den in dieser Arbeit bestimmten Ausbeuten wurden zusätzlich Ausbeuten aus [Bau 92],



wurden nicht beobachtet. verschiedene Spaltsysteme. Pfeile geben obere Grenzen an, d.h. diese Teilchen Abbildung 6.14: Vergleich der Ausbeuten unterschiedlicher ternärer Teilchen für

[Bör 93], [Bue 98], [Dav 97], [Hes 97], [Kös 97], [Kös 98], [Nas 92], [Neu 92], [Vor 69], [Vor 72], [Vor 75], [Wag 91] und [Wag 92] benützt. Alle Ausbeuten sind auf die Ausbeute des ternären α -Teilchens normiert, die auf 10⁴ gesetzt wurde. Bei diesem Überblick wurde für jedes Element nur dasjenige Isotop verwendet, das die größte Ausbeute besitzt. So handelt es sich zum Beispiel beim Beryllium nur um das Nuklid ¹⁰Be, das die größte Ausbeute aller Beryllium–Isotope besitzt. Für A = 0 wurde die Ausbeute der binären Spaltung eingetragen, d.h. es handelt sich um das Verhältnis von binärer zu ternärer α -Teilchen begleiteter Spaltung B/LRA (normiert auf eine α -Teilchen Ausbeute von 10⁴). Pfeile geben obere Grenzen von Ausbeuten an, d.h. nach diesen Nukliden wurde gesucht, aber ohne Erfolg. Der besseren Übersicht halber sind die Ausbeuten beziehungsweise oberen Grenzen bei den Reaktionen ${}^{233}U(n_{th},f)$ und ${}^{239}Pu(n_{th},f)$ für ternäre Teilchen mit $Z \ge 11$ etwas zu kleineren beziehungsweise größeren Massen hin verschoben. Die Figur macht den drastischen Abfall der Ausbeute ternärer Teilchen in Abhängigkeit von ihrer Masse und Kernladung deutlich. Das ternäre ³²Al-Nuklid kommt in der Reaktion 239 Pu(n_{th},f) nur etwa bei einer von 10^{11} Spaltungen vor ! Besonders auffällig ist in den Ausbeuten auch der ausgeprägte gerade-ungerade Effekt bezüglich der Elementnummer bei allen bislang untersuchten Aktiniden.

Generell gilt, daß mit wachsender Masse oder Kernladung des ternären Teilchens deren Ausbeuten für die untersuchten Aktinide immer stärker auseinanderlaufen. Die Abhängigkeit ternärer Teilchenausbeuten vom Compoundsystem läßt sich in zwei Bereiche unterteilen.

Für leichte ternäre Teilchen bis hin zum Sauerstoff ändert sich für ein spezielles Teilchen die Ausbeute in Abhängigkeit des Aktinids um nicht mehr als etwa eine Größenordnung. Bei einer genaueren Betrachtung läßt sich der Trend feststellen, daß mit steigender Masse und/oder Kernladung des Compoundsystems auch die Ausbeute der ternären Teilchen monoton ansteigt. Dies läßt sich am deutlichsten für Stickstoff beobachten. Dieses ternäre Teilchen besitzt für ²³⁶U^{*} die kleinste Ausbeute. Man findet in der Reihenfolge ²⁴⁰Pu^{*}, ²⁴²Pu^{*} und ²⁴³Am^{*} einen Anstieg, bis die größte Ausbeute bei ²⁵⁰Cf^{*} erreicht wird. Experimentelle Ausbeuten für ²³⁰Th^{*} und ²³⁴U^{*} existieren nicht.

Für schwerere ternäre Teilchen ab Fluor ändert sich das Verhalten. Im Gegensatz zu Teilchen mit $Z \leq 8$ existiert hier ein großer Unterschied zwischen den Ausbeuten eines bestimmten ternären Teilchens für die unterschiedlichen Aktinide. Die Ausbeute des ³⁰Mg–Nuklids ist bei der Reaktion ²⁴⁹Cf(n_{th},f) beispielsweise etwa 100 mal größer als bei der Reaktion ²³⁹Pu(n_{th},f). Für ein schweres Aktinid



Abbildung 6.15: Abhängigkeit der Ausbeuten ternärer Teilchen von der mittleren totalen Anregungsenergie \overline{TXE} des Spaltsystems ²⁵²Cf [Mut 96b]. Die gestrichelte Linie gibt den Verlauf qualitativ wieder.

(z.B. Californium oder Americium) ist dabei der Verlauf der ternären Teilchenausbeuten derart, wie man ihn bei einer Extrapolation von den leichten ternären Teilchen her erwarten würde. Im Gegensatz dazu beobachtet man für leichte Aktinide einen Abbruch in diesem Verlauf. Mit steigender Masse des ternären Teilchens wird der Unterschied zwischen den ternären Teilchenausbeuten bei leichten und schweren Aktiniden immer größer. Dies hat zur Folge, daß das schwerste, mit den heutigen technischen Mitteln nachweisbare ternäre Teilchen deutlich von der Masse und/oder Kernladung des spaltenden Compoundkerns abhängt. Bei den ²³⁰Th^{*}- und ²³⁴U^{*}-Spaltsystemen sind dies die Ne-Isotope, bei ²⁴⁰Pu^{*} die Al-Isotope sowie bei ²⁴³Am^{*}- und ²⁵⁰Cf^{*}-Spaltsystemen die Si-Isotope.

Der aktinidabhängige Abbruch im Verlauf der Ausbeuten läßt sich mit Hilfe eines kürzlich durchgeführten Experimentes zur Spontanspaltung von ²⁵²Cf [Mut 96b] verstehen. In diesem Experiment wurde nachgewiesen, daß die mittlere totale Anregungsenergie \overline{TXE} des ternären Systems mit steigender Masse und/oder Kernladungszahl des ternären Teilchens stark abnimmt (siehe Abbildung 6.15). Dies läßt sich mit dem Halpern-Modell verstehen. Die Energiekosten, d.h. diejenige Energie, die benötigt wird um das ternäre Teilchen aus dem Hals des spaltenden Systems herauszulösen, nimmt mit steigender Masse und/oder Kernladung des ternären Teilchens zu (siehe Abbildungen 2.4 und 2.5). Die Deformationsenergie am Szissionspunkt wird für das Aufbringen der Energiekosten verwendet. Da die Anregungsenergie größtenteils aus der Deformationsenergie stammt, muß sie mit steigenden Energiekosten und damit mit steigender Masse und/oder Kernladung der ternären Teilchen abnehmen. Andererseits nehmen die ternären Teilchenausbeuten mit steigender Masse und/oder Kernladungszahl ebenfalls stark ab. Deshalb müssen die mittleren totalen Anregungsenergien \overline{TXE} auch mit den ternären Teilchenausbeuten korreliert sein. Dies ist in Abbildung 6.15 durch die gestrichelte Gerade qualitativ dargestellt. In diesem Experiment war es für ternäre Teilchen mit $Z \geq 3$ nicht möglich, die einzelnen Massen der Isotope zu bestimmen. Die Li-, Be-, B- und C-Datenpunkte beschreiben daher die Summe aller jeweiligen Isotope.

Überträgt man den Verlauf der Ausbeuten in Abhängigkeit der \overline{TXE} auf die Reaktion ²⁴⁹Cf(n_{th},f), so erhält man für die Si–Isotope, welche die schwersten beobachteten ternären Teilchen darstellen, nur eine mittlere totale Anregungsenergie von etwa 5 MeV. Die ternäre Spaltung wäre in diesem Fall annähernd ein kalter Prozeß. Verallgemeinert wären die schwersten noch beobachtbaren ternären Teilchen gerade diejenigen, bei denen die ternäre Spaltung ein kalter Prozeß ist. Bei diesen Teilchen wird die Deformationsenergie vollständig für das Herauslösen aus dem Hals des spaltenden Kernes benötigt. Da keine Deformationsenergie mehr in Anregungsenergie umgewandelt werden kann, muß die mittlere totale Anregungsenergie gegen Null gehen. Andererseits fehlt für noch schwerere ternäre Teilchen mit entsprechend höheren Energiekosten die nötige Energie.

Es stellt sich dann die Frage, inwieweit man mit dieser Vorstellung verstehen kann, warum für die leichteren Aktinide die ternären Teilchenausbeuten schon bei kleineren ternären Massen beziehungsweise Kernladungen abbrechen. Dazu ist in Abbildung 6.16 die mittlere totale Anregungsenergie der Fragmente bei binärer Spaltung $\overline{TXE}_{\text{bin}}$ in Abhängigkeit des Spaltungsparameters Z^2/A aufgetragen. Für die berechnete Anregungsenergie gilt:

$$\overline{TXE}_{\text{bin}} = \overline{Q} - \overline{TKE}$$
$$= \frac{\sum_{A,Z} Q(A,Z) \cdot Y(A,Z)}{\sum_{A,Z} Y(A,Z)} - \overline{TKE}$$

Der Q-Wert wurde für sämtliche Verteilungen von Neutronen und Protonen auf



Abbildung 6.16: Abhängigkeit der mittleren totalen Anregungsenergie für binäre Spaltung $\overline{TXE}_{\text{bin}}$ vom Spaltungsparameter.

die Fragmente berechnet. Dieser Q-Wert wurde mit der Ausbeute der Fragmente Y(A,Z) [Eng 93] gewichtet. Die mittleren totalen kinetischen Energien \overline{TKE} sind für ²²⁹Th(n_{th},f) aus [Uni 74] sowie für ²³³U(n_{th},f) und ²³⁹Pu(n_{th},f) aus [Wag 91] übernommen worden. Die \overline{TKE} der Reaktionen ²⁴⁵Cm(n_{th},f), ²⁴¹Am(2n_{th},f) und ²⁴⁹Cf(n_{th},f) wurden aus der Beziehung [Vio 85]

$$\overline{TKE}_{\text{bin}} = (0,1189 \cdot \frac{Z^2}{A^{\frac{1}{3}}} + 7,3) \,\mathrm{MeV}$$

abgeschätzt. Abbildung 6.16 zeigt, daß die \overline{TXE}_{bin} mit der Masse und Kernladung der Spaltsysteme ansteigen.

Mit Hilfe der Abbildungen 6.15 und 6.16 sowie der Annahme, daß die Energie zum Herauslösen eines ternären Teilchens aus dem spaltenden Kern von der Deformationsenergie stammt, läßt sich der Abbruch im Verlauf der ternären Teilchenausbeuten in Abbildung 6.14 erklären. Schwere Aktinide wie z.B. Californium oder Americium können die hohen Energiekosten der schweren ternären Teilchen am Szissionspunkt aufbringen. Dies läßt sich aus der nicht verschwindenden mittleren totalen Anregungsenergie folgern. Aus diesem Grund läßt sich bei den schweren Aktiniden kein Abbruch im Verlauf der Ausbeuten beobachten. Die leichteren Plutoniumaktinide besitzen dagegen eine kleinere Anregungsenergie. Damit steht an ihrem Szissionspunkt weniger Energie für die Energiekosten der ternären Teilchen zur Verfügung. Im Gegensatz zum Californium erreicht beziehungsweise überschreitet man für die schweren ternären Teilchen den Bereich der kalten Spaltung. Deshalb brechen die Ausbeuten in Abbildung 6.14 bereits beim Aluminium ein. Das leichte ²³³U-Nuklid schließlich besitzt am Szissionspunkt die kleinste Anregungsenergie und der Abfall in den Ausbeuten fällt deshalb am stärksten aus und setzt bereits bei leichteren ternären Teilchen, nämlich ²⁷Na, ein. Der aktinidabhängige Abbruch im Verlauf der Ausbeuten könnte somit durch das Erreichen der kalten Spaltung erklärt werden. Ternäre Spaltung, bei der ein sehr schweres ternäres Teilchen emittiert wird, wäre somit ein kalter Prozeß.

Bisher wurde argumentiert, daß nur ternäre Teilchen emittiert werden können, deren Energiekosten kleiner oder gleich der Deformationsenergie am Szissionspunkt sind. Die Silicium–Isotope besitzen die höchsten Energiekosten aller bis heute detektierten ternären Teilchen. Sie betragen je nach Aktinid zwischen 60 MeV und 70 MeV (siehe Abbildung 2.5). Die mittlere Deformationsenergie am Szissionspunkt entspricht andererseits etwa der in der binären Spaltung auftretenden mittleren totalen Anregungsenergie. Aus Abbildung 6.16 ist ersichtlich, daß die mittlere Anregungsenergie $\overline{TXE}_{\text{bin}}$ für die Aktinide ²⁴³Am^{*} und ²⁵⁰Cf^{*} nicht mehr als 30 MeV beträgt. Sie ist somit deutlich kleiner als die Energiekosten der Silicium–Isotope. Daß die Silicium–Isotope trotzdem bei diesen Aktiniden beobachtet werden ist kein Widerspruch, da die $\overline{TXE}_{\text{bin}}$ –Verteilungen eine große Breite besitzen. Mittels Messung der Neutronenverteilungen aus den Fragmenten läßt sich für die Aktinide abschätzen, daß die Standardabweichung σ_{TXE} der Anregungsenergie typischerweise 10 MeV beträgt.

In Abbildung 6.14 sind auch die Ausbeuten der ternären ⁷Li, ¹⁰Be, ¹⁴C, ²⁰O, ²¹F und ²⁴Ne aus der Reaktion ²²⁹Th(n_{th} ,f) eingezeichnet. Nach der Systematik des Ausbeutenverlaufs in Abhängigkeit des Compoundkernes müßten die Ausbeuten der ternären Teilchen aus der Reaktion ²²⁹Th(n_{th} ,f) stets am kleinsten sein. Dies ist aber nicht der Fall. Die Ausbeuten entsprechen etwa denen der Reaktion ²³⁹Pu(n_{th} ,f), was man am besten bei den ternären ²¹F– und ²⁴Ne–Teilchen in Abbildung 6.14 beobachten kann. Da nur die ternären Teilchenausbeuten des ²³⁰Th^{*}–Compoundkernes nicht der Systematik gehorchen, liegt der Verdacht nahe, daß das Targetmaterial bei diesen Messungen verunreinigt war. Wie bereits in Abschnitt 5.1.3 erläutert wurde, kommen bei einer Verunreinigung des Targetmaterials von nur etwa 0,03 % durch ²³⁹Pu etwa die Hälfte der gemessenen ternären ²⁴Ne–Teilchen vom Plutonium. Deshalb sind die ²³⁰Th^{*}–Meßdaten eher



Abbildung 6.17: Energiekosten schwerer ternärer Teilchen aus der Reaktion $^{241}Am(2n_{th},f)$.

als obere Grenzen aufzufassen.

6.3.3 Schwerste ternäre Teilchen

Die schwersten bislang detektierten ternären Teilchen sind die Si–Isotope. Sie wurden bei den Reaktionen ²⁴¹Am(2n_{th},f) und ²⁴⁹Cf(n_{th},f) gefunden. Im Halpern– Modell bedeutet dies, daß alle ternären Teilchen, deren Energiekosten kleiner oder gleich den Energiekosten der beobachteten Si–Isotope sind, ebenfalls in diesen Reaktionen beobachtbar sein müßten. In Abbildung 6.17 ist der Verlauf der Energiekosten der Si– bis Cr–Isotope für die Reaktion ²⁴¹Am(2n_{th},f) gezeigt. Die Energiekosten wurden gewichtet. Im Gegensatz zu den leichten Teilchen (siehe Abbildung 2.4) steigen ab Silicium die Energiekosten in Abhängigkeit der Masse und/oder Kernladung der ternären Teilchen nicht mehr an. Für die experimentell nachgewiesenen Si–Isotope erhält man etwa 65 MeV. Bei den P–Isotopen gibt es Teilchen mit vergleichbaren Energiekosten, während ab den S–Isotopen sogar einige mit kleineren Energiekosten existieren. Nach dem Halpern–Modell müßten somit ternäre Teilchen mit Z > 14 auftreten und nachweisbar sein. Diese Teilchen müßten sogar eine etwas größere Ausbeute als die Si–Isotope besitzen. In [Hes 97] wurden obere Grenzen in den Ausbeuten von ⁴²S und ⁵⁰Ca, die kleinere



Abbildung 6.18: Massenausbeuten der ternären Teilchen und binären Fragmente der Reaktion 239 Pu(n_{th},f).

Energiekosten als die beobachteten Si-Isotope haben, bestimmt. Diese oberen Grenzen liegen etwa eine Größenordnung niedriger als die Ausbeuten der Si-Isotope. Während das Halpern-Modell die Ausbeuten ternärer Teilchen bis zu den Si-Isotopen gut beschreibt, ist dies offensichtlich für größere Kernladungen nicht mehr der Fall. Es tritt demnach ein Prozeß ein, der nicht im Halpern-Modell berücksichtigt wird. Eine Möglichkeit wäre die endliche zur Verfügung stehende Nukleonenanzahl im Hals des spaltenden Kerns. Aufgrund der in Abschnitt 6.3.1 beschriebenen Besonderheit der Massenregion $132 < A_{\rm HF} < 142$ könnte es sein, daß für nennenswerte ternäre Ausbeuten das schwere Fragment mindestens 132 Sn enthalten muß. Diese Vermutung wird auch durch die Tatsache unterstützt, daß in der binären Niederenergiespaltung nur nennenswerte Ausbeuten für Fragmente schwerer als ca. ¹³²Sn beobachtet werden. Falls das komplementäre leichte Fragment mit einer ähnlichen Argumentation wie für ¹³²Sn mindestens das magische ⁸²Ge-Nuklid enthält, bleiben für den Hals des spaltenden Systems nur eine begrenzte Anzahl von Nukleonen übrig. Allerdings ist in der leichten Fragmentgruppe die Situation nicht so eindeutig wie bei dem doppelmagischen ¹³²Sn in der Gruppe der schweren Fragmente. Rechnungen zum zeitlichen Ablauf der Spaltung in einem 2–Zentren Schalenmodell [Mos 71] haben bereits vor vielen Jahren zu der Erkenntnis geführt, daß Schaleneffekte der Fragmente schon sehr früh im Spaltprozeß sichtbar werden. Die Dynamik des Spaltprozesses könnte demnach dafür verantwortlich sein, daß mindestens ¹³²Sn als Cluster im schweren Fragment und ein Cluster in der Nähe von ⁸²Ge im leichten Fragment vorhanden sein müssen. Für die spaltenden Aktinide Americium beziehungsweise Californium würden maximal etwa 30 bis 40 Nukleonen im Hals verbleiben. Die Ausbeuten noch schwererer ternärer Teilchen müßten demnach stark unterdrückt sein, welches deren erfolglose Suche erklären könnte.

In Abbildung 6.18 sind die Massenausbeuten ternärer Teilchen sowie binärer Fragmente der Reaktion ²³⁹Pu(n_{th} ,f) dargestellt. Das schwerste ternäre Teilchen ist das in dieser Arbeit detektierte ³²Al. Das leichteste entdeckte Spaltfragment hat eine Massenzahl von 68 [Dit 91]. Dies bedeutet, daß bis heute eine Lücke im Massenspektrum zwischen den schwersten ternären Teilchen und den leichtesten Spaltfragmenten existiert. Es ist dabei interessant darauf hinzuweisen, daß die Untersuchungen am Lohengrin zur ternären Spaltung bis hinab zu Ausbeuten von ca. 10^{-11} /Spaltung getrieben werden konnten, während die Lohengrinexperimente zur binären Spaltung "nur" bis zu Ausbeuten von 10^{-8} /Spaltung reichen. Hier kommt zum Ausdruck, daß dank der von den ternären Teilchen eingehaltenen Systematik in den Energieverteilungen man in der ternären Spaltung schon aus dem Nachweis von wenigen Einzelereignissen die Gesamtausbeuten einigermaßen verläßlich abschätzen kann.

Schließlich lassen sich anhand von Abbildung 6.18 die Spekulationen zu den magischen Clustern in den Spaltfragmenten von experimenteller Seite her erhärten, wobei die herausgehobenen Cluster aus der Feinstruktur in den Ausbeutekurven der Fragmentmassen erschlossen werden. In der binären Massenverteilung ist im schweren Ast deutlich zu erkennen, daß für Massenzahlen A < 132die Ausbeute steil abnimmt (man beachte die logarithmische Skala). Das ist so zu interpretieren, daß – wie oben schon argumentiert – für nennenswerte Ausbeuten das schwere Fragment mindestens das doppelt magische ¹³²Sn enthalten muß. Der Einfluß von magischen Clustern läßt sich damit direkt an der Ausbeutekurve für Spaltfragmente ablesen. Im leichten Ast ist für A = 80 ebenfalls ein Knick in der Steigung der Ausbeutekurven auszumachen, d.h. Ausbeuten für A < 80 sind zunehmend unterdrückt. In Abbildung 6.19 ist der Deutlichkeit halber die Massenausbeute der leichten Fragmente im Bereich $74 \leq A \leq 84$ vergrößert dargestellt [Gön 99]. Neben den Massenausbeuten der Reaktion ²³⁹Pu(n_{th},f) [Dit 91] sind



Abbildung 6.19: Ausschnitt aus der Massenverteilungskurve der leichten Fragmente für verschiedene durch thermische Neutronen gespaltene Aktinide [Gön 99]. Der Deutlichkeit halber sind die einzelnen Kurven um jeweils einen Faktor 10 gegeneinander versetzt. Die Figur wurde freundlicherweise von H.O. Denschlag zur Verfügung gestellt.

noch diejenigen der Reaktionen 235 U(n_{th},f) [Sid 89], 242m Am(n_{th},f) [Dav 98] und 249 Cf(n_{th},f) [Hen 94] dargestellt. An die Meßwerte im Bereich A = 80 bis A = 84wurde zur Verdeutlichung des Knickpunktes in der logarithmischen Darstellung jeweils eine Gerade angefittet. Es fällt auf, daß bei allen bisher gemessenen Massenausbeuten bei der Masse A = 80 ein Knick auftritt. Lediglich bei ²⁵⁰Cf* scheint er bei A = 79 zu liegen. Im leichten Fragment läßt sich der doppeltmagische $^{78}_{28}{\rm Ni-Cluster}$ in Analogie zu $^{132}{\rm Sn}$ beim schweren Fragment nicht realisieren, da seine Ladungsdichte zu weit weg vom Tal der Stabilität ist. Dagegen beobachtet man in den Massen- und Ladungsausbeuten der leichten Fragmente bei A = 70 eindeutig den Schalenabschluß für Z = 28 [Tse 99]. Hinter dem Knick der Ausbeutekurve bei A = 80 verbirgt sich das Isotop $^{80}_{32}$ Ge, also ein Nuklid nahe dem N = 50 Schalenabschluß. Eine unabhängige experimentelle Stütze der Vorstellung, daß die Fragmente A = 80 und A = 132 kalten undeformierten Clustern entsprechen, ist in Abbildung 6.13 zu sehen. Die Neutronenmultiplizität ν läuft bei diesen Massen durch ein Minimum. Es wird daher vom Experiment nahegelegt, daß am Szissionspunkt innerhalb des leichten Fragments ein harter Cluster mit Z = 28 existiert, der von weiteren Nukleonen umgeben ist, die den

Erhalt der Neutronenzahl von 50 näherungsweise sicherstellen.

Führt man die Argumentation, daß das schwere Fragment mindestens die Masse A = 132 und das leichte Fragment die Masse A = 80 enthalten muß, zuende, so läßt sich für die Ausbeuten der ternären Teilchen vermuten, daß auch diese steiler abfallen sollten, sobald im Beispiel des ²⁴⁰Pu^{*} die Masse des ternären Teilchens A = 240 - 132 - 80 = 28 übersteigt. Diese Prognose findet man in Abbildung 6.18 nicht unmittelbar und massengenau bestätigt, aber in Abbildung 6.14 ist der Abbruch in den ternären Teilchenausbeuten von 240 Pu^{*} für A \approx 30 gut zu erkennen. Für den Compoundkern ²³⁴U^{*} erwartet man den Einbruch der Ausbeute der ternären Teilchen bei A = 22, während im Experiment der Abbruch nahe der Masse A = 24 beobachtet wird (siehe Abbildung 6.14). Zumindest qualitativ beschreibt das diskutierte Bild damit auch das Wegbrechen der Ausbeute für schwere ternäre Teilchen in Abhängigkeit des spaltenden Kerns in Abbildung 6.14. Diese Deutung der Experimente ist parallel zu der oben gegebenen Interpretation im Sinne der kalten Spaltung zu sehen, wobei eine enge Beziehung zwischen beiden Betrachtungsweisen nahe liegt. Kalte ternäre Spaltung würde nämlich dann eintreten, wenn die beiden Spaltfragmente undeformierte Cluster sind und die gesamte Deformation des Compoundkerns am Szissionspunkt von den Halsnukleonen getragen wird, die kollektiv als schweres ternäres Teilchen freigesetzt werden.

Kapitel 7

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden die Ausbeuten und Energieverteilungen ternärer Teilchen aus den Reaktionen ²²⁹Th(n_{th},f), ²³³U(n_{th},f) und ²³⁹Pu(n_{th},f) bestimmt. Die Experimente wurden am Massenseparator Lohengrin des Instituts Laue-Langevin durchgeführt. An diesem Institut wird den Experimentatoren der höchste Neutronenfluß der Welt zur Verfügung gestellt. Aufgrund des hohen Neutronenflusses ist es bei den untersuchten Reaktionen gelungen, viele schwere ternäre Teilchen erstmals zu beobachten. Ausgehend von den bis zu diesem Zeitpunkt schwersten bekannten ternären Teilchen, nämlich ²⁰O, wurden die Energieverteilungen und Ausbeuten noch schwererer Teilchen bis hinauf zu neutronenreichen Si-Isotopen bestimmt.

Bei der Reaktion ²²⁹Th(n_{th} ,f) waren als ternäre Teilchen nur Tritonen und α -Teilchen bekannt. In der vorliegenden Arbeit wurden 17 weitere ternäre Teilchen identifiziert, wobei für 11 eine Ausbeute angegeben werden konnte. Das schwerste beobachtete Teilchen war das ²⁴Ne-Nuklid. Allerdings konnte nicht geklärt werden, inwiefern eine Kontamination des Thoriumtargets etwa durch Plutonium insbesondere für die schweren ternären Teilchen zu verläßlichen Resultate geführt hat. Bei der Reaktion ²³³U(n_{th} ,f) wurden 25 unterschiedliche ternäre Teilchen detektiert, davon wurden 22 neu entdeckt. Neben der Bestimmung der Ausbeuten von 16 Teilchen konnte zusätzlich eine obere Grenze für die Ausbeute des ²⁷Na-Nuklids angegeben werden. Das schwerste beobachtete ternäre Teilchen bei der Reaktion ²³³U(n_{th} ,f) war das ²⁴Ne-Nuklid. Bei der Reaktion ²³⁹Pu(n_{th} ,f) gelang es 36 unterschiedliche ternäre Teilchen zu identifizieren, davon 23 erstmals bei dieser Reaktion. Für sechs ternäre Teilchen wurde zum ersten Mal die Ausbeute bestimmt, darunter ³²Al als schwerstes Nuklid. Dieses Nuklid besitzt die kleinste bis heute bekannte ternäre Teilchenausbeute. Es wird in der Reaktion 239 Pu(n_{th},f) in etwa einer von 10¹¹ Spaltungen gebildet.

Die experimentellen Ausbeuten wurden den im Halpern-Modell der ternären Spaltung berechneten Ausbeuten gegenübergestellt. Dieses Modell setzt an, daß die Ausbeuten wesentlich von den Energiekosten bestimmt werden, die aufgebracht werden müssen, um im Vergleich zu binärer Spaltung ein weiteres ternäres Teilchen zu emittieren. Dabei steigen die Energiekosten mit der Masse beziehungsweise Ladung des ternären Teilchens. Das Modell ist in der Lage die Trends in den Ausbeuten zu beschreiben.

In der vorliegenden Arbeit wurde festgestellt, daß im Gegensatz zu leichten ternären Teilchen die Ausbeuten schwerer Teilchen $(Z \ge 8)$ deutlich vom spaltenden Aktinid abhängen. Die Ausbeute ternärer Teilchen mit $Z \leq 8$ ändert sich nur wenig in der Aktinidenreihe von Thorium bis Californium. Für ternäre Teilchen mit größerer Kernladung wurden dagegen Ausbeuteunterschiede von mehr als zwei Größenordnungen gemessen. Mit steigender Masse und/oder Kernladung der ternären Teilchen wird dabei der Ausbeuteunterschied zwischen leichten und schweren Aktiniden immer größer. Der abrupte Abfall in den Ausbeuten der schwersten dann im Experiment noch zugänglichen ternären Teilchen fällt praktisch zusammen mit dem Erreichen der kalten Spaltung, d.h. einem Spaltprozeß der ohne jegliche Anregungsenergie der beteiligten Teilchen abläuft. Bei leichten Aktiniden wird kalte Spaltung für ternäre Teilchen mit kleineren Massen und/oder Kernladungen erreicht als bei schweren Aktiniden. Dies findet seine natürliche Erklärung in der Tatsache, daß die zur Abdeckung der Energiekosten der ternären Teilchen verfügbare Energie mit der Fissilität Z^2/A des spaltenden Kerns anwächst. Es handelt sich hier um den erstmaligen Nachweis kalter ternärer Spaltung in dem Sinne, daß dieser Prozeß grundsätzlich und nicht nur in Grenzfällen kalt abläuft.

In der Arbeit wird ferner diskutiert, daß für die Reaktionen ²⁴¹Am(2n_{th},f) und ²⁴⁹Cf(n_{th},f) keine ternären Teilchen mit Kernladungen Z > 14 gefunden wurden, obwohl diese teilweise kleinere Energiekosten besitzen und daher nach dem Halpern-Modell beobachtbar sein sollten. Die Messungen für ²⁴⁹Cf(n_{th},f) sind allerdings noch nicht abschließend durchgeführt worden. Dies wird mit einem weiteren, neben der kalten Spaltung existierenden, ausbeuteunterdrückenden Effekt erklärt. Es wird argumentiert, daß die aus dem Hals des spaltenden Kerns emittierten ternären Teilchen nur eine begrenzte Anzahl von Nukleonen zu ihrer Bildung zur Verfügung haben. Für nennenswerte Ausbeuten in der ternären Spaltung sollte das schwere Fragment nicht leichter als das doppeltmagische ¹³²Sn sein sowie das komplementäre leichte Fragment mindestens in einem Massenbereich um das ⁸⁰Ge-Nuklid liegen. Dies ergibt für die spaltenden Aktinide ²⁴³Am^{*} und ²⁵⁰Cf^{*} maximal etwa 30 bis 40 Nukleonen für den Hals des spaltenden Kerns und somit für das entstehende ternäre Teilchen. Die Ausbeuten von noch schwereren ternären Teilchen sind stark unterdrückt. Dies würde die Beobachtung von $^{35}\mathrm{Si}$ bei der Reaktion $^{241}Am(2n_{th},f)$ als schwerstes ternäres Teilchen erklären, während die oberen Grenzen noch schwererer Teilchen zu etwa einer Größenordnung niedriger bestimmt wurden. Diese Deutung führt auch für die in der vorliegenden Arbeit untersuchten spaltenden Kerne ²³⁰Th*, ²³⁴U* und ²⁴⁰Pu* zu Voraussagen für die Masse beziehungsweise Kernladung der ternären Teilchen, bei den die Ausbeuten unvermittelt rasch abfallen. Die Voraussagen passen bei ²³⁴U* und ²⁴⁰Pu^{*} (nicht aber bei ²³⁰Th^{*}) gut mit dem Experiment zusammen. Dabei sollte betont werden, daß die beiden vorgetragenen Deutungsmöglichkeiten für das eigentümliche Verhalten der Ausbeuten, nämlich zum einen die kalte Spaltung und zum anderen die Bildung von Clusterfragmenten, sehr eng miteinander verwandt sind. In der Tat sollte kalte ternäre Spaltung genau dann erwartet werden, wenn die beiden Hauptfragmente undeformierte Cluster sind und die Deformation, die durch den Hals zwischen den Fragmenten beschrieben wird, mit der Emission eines aus den Halsnukleonen gebildeten ternären Teilchens abgebaut wird.

Literaturverzeichnis

- [And 69] V. N. Andreev et al., Sov. J. of Nucl. Phys. 1, 22 (1969).
- [Asg 82] M. Asghar et al., Nucl. Phys. A 373, 225 (1982).
- [Bar 72] E. Baron, IEEE Trans. Nucl. Sci. **NS-19**, 256 (1972).
- [Bar 75] E. Baron, Dissertation, Orsay (Frankreich) (1975).
- [Bar 79] E. Baron, IEEE Trans. Nucl. Sci. **NS-26**, 2411 (1979).
- [Bau 81] Y. Baudinet–Robinet, Nucl. Instr. Methods **190**, 197 (1981).
- [Bau 82] Y. Baudinet–Robinet, Phys. Rev. A 26, 62 (1982).
- [Bau 92] W. Baum, Dissertation, TU Darmstadt (1992).
- [Bet 84] H. D. Betz, in "Applied Atomic Collision Physics", Vol. 4, edited by S. Datz, Academic Press, New York/London, 1 (1984).
- [Boc 90] J. P. Bocquet et al., Z. f. Phys. A 335, 41 (1990).
- [Bör 93] B. Börsig, Dissertation, U Tübingen (1993).
- [Bou 89] N. Boucheneb et al., Nucl. Phys. A 502, 261c (1989).
- [Bue 98] Z. Büyükmumcu et al, ILL Experimental Report 1998, wird veröffentlicht.
- [Dav 97] M. Davi, Dissertation, U Mainz (1997).
- [Dav 98] M. Davi et al., Proc. of the 2nd Int. Workshop on Nuclear Fission and Fission–Product Spectroscopy, Seyssins (Frankreich), 1998, eds. G. Fioni, H. Faust, S. Oberstedt und F.-J. Hambsch, AIP Conference Proceedings 447, Woodbury, 239 (1998).

- [D'Ho 80] P. D'Hondt et al., Nucl. Phys. A 346, 461 (1980).
- [Dit 91] W. Ditz, Dissertation, U Mainz (1991).
- [Eng 93] T.R. England und B.F. Rider, Los Alamos National Laboratory, LA– UR-94-3106, ENDF-349 (1993).
- [Fio 91] G. Fioni et al., Nucl. Instr. Methods A 332, 175 (1993).
- [Fri 98] T. Friedrichs, Dissertation, TU Braunschweig (1998).
- [Gön 89] F. Gönnenwein, Nucl. Phys. A 502, 159 (1989).
- [Gön 99] F. Gönnenwein et al., Jahresbericht 1998 des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz, wird veröffentlicht.
- [Göp 90] A. Göpfert, Diplomarbeit, TH Darmstadt (1990).
- [Gre 98] W. Greiner, 4rd Int. Workshop on Dynamical Aspects on Nuclear Fission and Fission–Product Spectroscopy, Častá–Papiernička (Slovakei), 1998.
- [Hal 71] I. Halpern, Annu. Rev. Nucl. Sci. **21**, 245 (1971).
- [Ram 98] A.V. Ramayya et al., Phys. Rev. Let. **81**, 947 (1998).
- [Hah 39] O. Hahn und F. Straßmann, Naturwissenschaften 17, 11 (1939).
- [Hen 92] R. Hentzschel, Dissertation, U Mainz (1992).
- [Hen 94] R. Hentzschel et al., Nucl. Phys. A571, 427 (1994).
- [Hes 92] M. Hesse, Diplomarbeit, TU Dresden (1992).
- [Hes 97] M. Hesse, Dissertation, U Tübingen (1997).
- [Hve 70] P. Hvelplund et al., Nucl. Instr. Methods **90**, 315 (1970).
- [ILL 97] http://www.ill.fr/pn1/pn1.html.
- [Jes 99] P. Jesinger, private Mitteilung.
- [Kny 81] E. J. Knystautas und M. Jomphe, Phys. Rev. A23, 679 (1981).
- [Kös 97] U. Köster, private Mitteilung.

- [Kös 98] U. Köster et al., Proc. of the 2nd Int. Workshop on Nuclear Fission and Fission–Product Spectroscopy, Seyssins (Frankreich) 1998, eds. G. Fioni, H. Faust, S. Oberstedt und F.-J. Hambsch, AIP Conference Proceedings 447, Woodbury, 315 (1998).
- [Lov 74] W. Loveland, Phys. Rev. **C9**, 395 (1974).
- [Mei 39] L. Meitner und O. R. Fritsch, Nature **143**, 239 (1939).
- [Mol 77] E. Moll et al., Kerntechnik 8, 374 (1977).
- [Mos 71] U. Mosel und H.W. Schmitt, Nucl. Phys. A165, 73 (1971).
- [Mus 95] G. Musiol et al., Kern- und Elementarteilchenphysik, Verlag Harri Deutsch, 2. Auflage 1995.
- [Mut 96a] M. Mutterer und J.P. Theobald, Particle-accompanied Fission, in "Nuclear Decay Modes", D.N. Poenaru (Ed.), IOP Publishing Ltd, Bristol (1996).
- [Mut 96b] M. Mutterer et al., Proc. of 3rd Int. Workshop on Dynamical Aspects of Nuclear Fission, Častá–Papiernička (Slovakei), 1996, eds. J. Kliman und B.I. Pustylnik, Dubna, 250 (1996).
- [Mut 98] M. Mutterer et al., Proc. of 4rd Int. Workshop on Dynamical Aspects on Nuclear Fission and Fission–Product Spectroscopy, Častá–Papiernička (Slovakei), 1998, wird veröffentlicht.
- [Nas 92] U. Nast-Linke, Diplomarbeit, TU Darmstadt (1992).
- [Neu 92] S. Neumaier, Diplomarbeit, TU Darmstadt (1992).
- [Nik 68] V. S. Nikolaev und I. S. Dmitriev, Phys. Lett. **28** A, 277 (1968).
- [Nor 70] L. C. Northcliffe und R. F. Schilling, Nuclear Data Tables, A7, 233 (1970).
- [Pik 94] G.A. Pik-Pichak, Phys. of Atomic Nucl. 57, 906 (1994).
- [Pfi 98] R. Pfister, Diplomarbeit, U Tübingen (1998).
- [Rub 82] V.A. Rubchenya, Sov. J. Nucl. Phys. **35**, 334 (1982).

- [Rub 84] V.A. Rubchenya und S. G. Yavshits, Sov. J. Nucl. Phys. **40**, 416 (1984).
- [Rub 88] V.A. Rubchenya und S. G. Yavshits, Z. Phys. A 329, 217 (1988).
- [Rub 94] V.A. Rubchenya et al., Proc. of 1rd Int. Workshop on Nuclear Fission and Fission–Product Spectroscopy, Seyssins (Frankreich), 1994, eds. H. Faust und G. Fioni, Grenoble 1994.
- [San 47] T. San–Tsiang et al., Phys. Rev. **71**, 382 (1947).
- [Sei 97] D. Seidel, Staatsexamensarbeit, U Tübingen (1997).
- [Sid 89] J.L. Sida et al., Nucl. Phys. **A502**, 233c (1989).
- [Sin 96] P. Singer et al., Proc. of 3rd Int. Workshop on Dynamical Aspects of Nuclear Fission, Častá–Papiernička (Slovakei), 1996, eds. J. Kliman und B.I. Pustylnik, Dubna, 262 (1996).
- [ToD 79] K. X. To und R. Drouin, Nucl. Instr. and Meth. **160**, 461 (1979).
- [Tse 99] I. Tsekhanovitch et al., Jahresbericht 1998 des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz, wird veröffentlicht.
- [Uni 74] J.P. Unik et al., Proc. of Symp. Physics and Chemestry of Fission, Vol. 2, IAEA, Wien, 20 (1974).
- [Vio 85] V.E.Viola et al., Phys. Rev. C31, 1550 (1985).
- [Vor 69] A.A. Vorobiev et al., Phys. Lett. **30 B**, 332 (1969).
- [Vor 72] A.A. Vorobiev et al., Phys. Lett. **40** B, 102 (1972).
- [Vor 75] A.A. Vorobiev et al., Sov. J. Nucl. Phys. **20**, 248 (1975).
- [Wag 86] C. Wagemans et al., Phys. Rev. C33, 943 (1986).
- [Wag 91] C. Wagemans, Ternary Fission, in "The Nuclear Fission Process",C. Wagemans (Ed.), CRC Press, Boca Raton, Fl. USA (1991).
- [Wag 92] C. Wagemans, Proc. Int. Workshop on Dynamical Aspects on Nuclear Fission, Smolenice (Slovakei) 1991, eds. J. Kristiak und B.I. Pustylnik, Dubna 1992.

- [Whe 67] S. Whetstone und T. Thomas, Phys. Rev. **154**, 1174 (1967).
- [Wös 95] M. Wöstheinrich, Diplomarbeit, U Tübingen (1995).
- [Wös 96] M. Wöstheinrich et al., Proc. of 3rd Int. Workshop on Dynamical Aspects of Nuclear Fission, Častá–Papiernička (Slovakei), 1996, eds. J. Kliman und B.I. Pustylnik, Dubna, 231 (1996).
- [Wös 97] M. Wöstheinrich et al., ILL Experimental Report 1996, 11 (1997).
- [Wös 98a] M. Wöstheinrich et al., Proc. of the 2nd Int. Workshop on Nuclear Fission and Fission–Product Spectroscopy, Seyssins (Frankreich) 1998, eds. G. Fioni, H. Faust, S. Oberstedt und F.-J. Hambsch, AIP Conference Proceedings 447, Woodbury, 330 (1998).
- [Wös 98b] M. Wöstheinrich et al., Acta Physica Slovaca **49**, 117 (1999), wird veröffentlicht.
- [Zie 80] J.F. Ziegler, Handbook of stopping cross-sections for energetic ions in all elements, **Vol. 5**, Pergamon Press (1980).
- [Zie 85] J.F. Ziegler, The stopping power and ranges of ions in solid, Vol. 1, Pergamon Press (1985).

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Prof. Dr. F. Gönnenwein. Durch seine ständige Unterstützung und Hilfe bei der Interpretation der experimentellen Ergebnisse wurde ein Großteil dieser Arbeit erst möglich. Desweiteren ermöglichte er mir mehrere lehrreiche Aufenthalte am Institut Laue-Langevin (Grenoble). Dank seiner Hilfe war es mir möglich, auf mehreren internationalen Konferenzen meine Ergebnisse zu präsentieren.

Herzlichen Dank an "meinen Diplomanden" Dipl.-Phys. R. Pfister und "meinen Staatsexamler" D. Seidel. Aufgrund ihrer Arbeiten und unseren Diskussionen haben sie zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Für das freundliche Klima und die Unterstützung in der Arbeitsgruppe möchte ich meinen Kollegen Dr. M. Hesse, Dr. J. Kaufmann, Dr. M. Ait-Salem, Dipl.-Phys. A. Kötzle, Dipl.-Phys. P. Jesinger, Dipl.-Phys. S. Dilger, Dipl.-Phys. M. Cröni, Dipl.-Phys. R. Alich, Dipl.-Phys. R. Pfister und D. Seidel danken.

Für die Unterstützung bei der Durchführung der Experimente am Institut Laue-Langevin und für die Hilfe bei Problemen mit dem Massenspektrometer Lohengrin möchte ich mich bei Dr. H. Faust, Dr. S. Oberstedt, Dr. T. Friedrichs und Dr. M. Groß bedanken.

Zum Verständnis der Spaltung haben mir die Diskussionen mit Dr. M. Mutterer, Dr. M. Davi, Dipl.-Phys. I. Tsekhanovitsch und Dipl.-Phys. U. Köster sehr geholfen.

Ganz besonders danken möchte ich meiner Frau Karin. Durch sie habe ich immer wieder neue Kraft zur Bewältigung dieser Arbeit geschöpft.

Bei meinen Eltern möchte ich mich dafür bedanken, daß sie mir das Physikstudium ermöglicht haben.

Diese Arbeit wurde vom Bundesministerium für Bildung und Forschung unterstützt.

Lebenslauf

Persönliche Daten

Marcus Wöstheinrich
28. Januar 1967
Duisburg
verheiratet seit dem 19. Juli 1996 mit
Karin Wöstheinrich, geb. Oberreuter
deutsch
römisch-katholisch

Schulbildung

1973 - 1977	Grundschule Kirchhaldenschule in Stuttgart
1977 - 1978	Schloß-Realschule für Jungen in Stuttgart
1978 - 1987	Gymnasium Königin-Olga-Stift in Stuttgart
2. Juni 1987	Erwerb der allgemeinen Hochschulreife

Grundwehrdienst

Juli 1987 - September 1988

4./Panzergrenadierbataillon 223 in München

Physikstudium

Oktober 1988 - Juni 1995 19. Februar 1991 15. Juni 1995 Eberhard-Karls-Universität Tübingen Vordiplom Diplom

Promotion

seit Juni 1995	Anfertigung einer Dissertation am Physika-
	lischen Institut der Universität Tübingen
Juni 1995 - Juni 1996	Promotionsstipendium des Graduiertenkollegs
	"Struktur und Wechselwirkung von Hadronen
	und Kernen"
seit Juli 1996	Wissenschaftlicher Angestellter am Physika-
	lischen Institut der Universität Tübingen