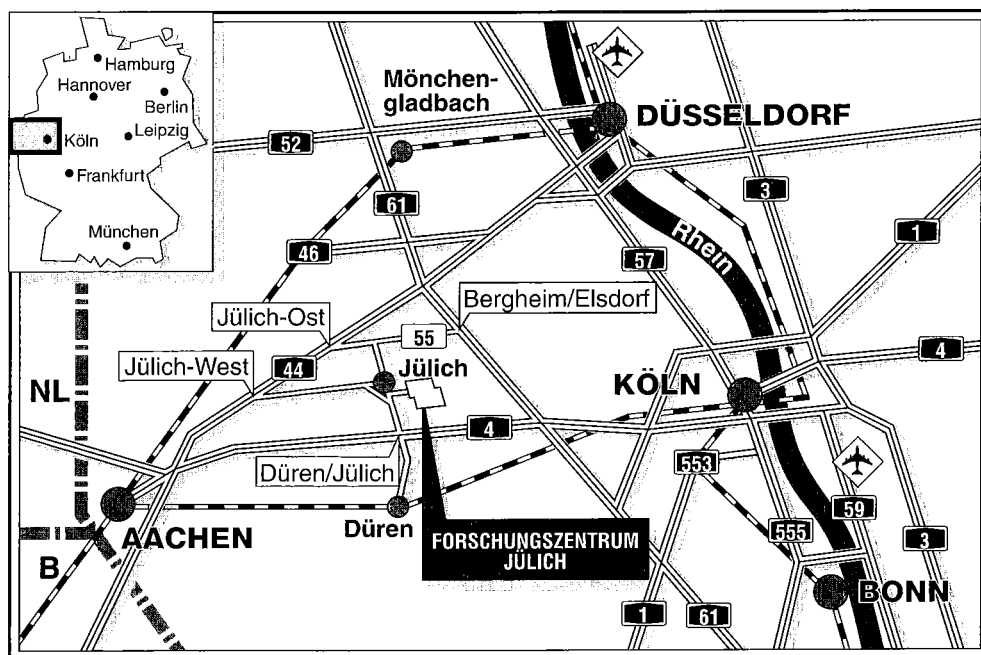


*Institut für Sicherheitsforschung
und Reaktortechnik*

**Untersuchungen zur Wechselwirkung
von Iod mit hochenergetischen
Protonen von 145 bis 2600 MeV:
Messung von Wirkungsquerschnitten**

G. Modolo M. Holzbach



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3257

ISSN 0944-2952

Institut für Sicherheitsforschung und Reaktortechnik Jül-3257

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

Telefon: 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · Telex: 833556-70 kfa d

**Untersuchungen zur Wechselwirkung
von Iod mit hochenergetischen
Protonen von 145 bis 2600 MeV:
Messung von Wirkungsquerschnitten**

G. Modolo M. Holzbach

Kurzfassung

Transuranelemente und Spaltprodukt nuklide wie ^{129}I bestimmen die Langzeittoxizität des radioaktiven Abfalls. Deshalb wird ihre chemische Abtrennung mit anschließender Transmutation zu stabilen oder kurzlebigen Nukliden diskutiert. Durch Neutroneneinfang ließe sich das langlebige ^{129}I in stabiles gasförmiges ^{130}Xe transmutieren. In dieser Studie wurde alternativ zur neutronen-induzierten Transmutation von ^{129}I die Wechselwirkung von NaI mit hochenergetischen Protonen experimentell untersucht. Mit Hilfe der stacked-foil-Technik wurden im Zeitraum 1994 bis 1995 sechs Bestrahlungsexperimente am Synchrotron des Laboratoire National Saturne in Saclay (Frankreich) bei Protonenenergien zwischen 145 und 2600 MeV durchgeführt. Durch γ -spektrometrische Untersuchung der bestrahlten Proben wurden 261 Wirkungsquerschnitte für über 50 protonen-induzierte Reaktionen bestimmt. Die experimentell ermittelten neuen Anregungsfunktionen wurden mit den unvollständigen Datensätzen vergleichbarer Arbeiten und mit den Vorhersagen eines semiempirischen Ansatzes verglichen.

Abstract

Transuranic elements and fission product nuclides such as ^{129}I determine the long-term toxicity of radioactive waste. For this reason, their chemical separation with subsequent transmutation into stable or short-lived nuclides is being discussed and investigated. Long-lived ^{129}I could be transmuted into stable gaseous ^{130}Xe by neutron capture. As an alternative to the neutron-induced transmutation of ^{129}I , the interaction of NaI with high-energy protons has been experimentally investigated in this study. In 1994 - 95 a series of irradiations with proton energies between 145 and 2600 MeV were carried out at the synchrotron of the Laboratoire National Saturne in Saclay (France) using the stacked-foil technique. The effective cross sections for more than 50 proton-induced reactions were determined by γ -spectrometry. The new excitation functions determined experimentally were compared with the incomplete data sets from earlier studies and discussed in the context of existing semiempirical formula for the calculation of spallation cross-sections.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung und Problemstellung	1
2. Auswertung der Bestrahlungsversuche	3
2.1 Bestrahlungsexperimente	3
2.2 Target	4
2.3 γ -Spektroskopie	5
2.3.1 Durchführung der Messungen	8
2.3.2 Flußbestimmung mit Monitorreaktionen	8
2.3.3 Auswertung der γ -Spektren	9
2.3.4 Berechnung von Wirkungsquerschnitten aus γ -spektrometrischen Messungen	12
2.4 Allgemeine Fehlerbetrachtung	15
3. Ergebnisse und Diskussion	18
3.1 Wirkungsquerschnitte protonen-induzierter Kernreaktion an ^{127}I und Vergleich mit Literaturwerten	18
3.1.1 Allgemeines	18
3.1.2 Produktnuklide ^{127}Xe , ^{125}Xe , und ^{122}Xe aus ^{127}I	20
3.1.3 Produktnuklide ^{126}I , ^{124}I und ^{123}I aus ^{127}I	23
3.1.4 Anregungsfunktionen ausgewählter Mittelenergieprodukte	25
3.1.5 Anregungsfunktionen ausgewählter Hochenergieprodukte	26
3.1.6 Massenausbeute-Kurven und Vergleich mit dem Targetelement Barium	27
3.2 Vergleich der experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte mit Vorhersagen eines semiempirischen Modells	29
4. Zusammenfassung und Ausblick	32
5. Literatur	33
Anhang :	35
A: Spektroskopische Interferenzen	35
B: In dieser Arbeit bestimmte experimentelle Wirkungsquerschnitte	36

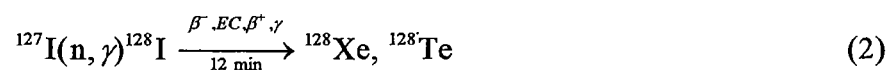
1. Einleitung und Problemstellung

Transuranelemente und Spaltprodukt nuklide wie ^{129}I und ^{99}Tc bestimmen die Langzeittoxizität des radioaktiven Abfalls. Deshalb wird ihre chemische Abtrennung mit anschließender Transmutation diskutiert [19, 20]. Das Konzept der Transmutation beruht auf einer Umwandlung der langlebigen radiotoxischen Nuklide in kurzlebige bzw. stabile Isotope mit Hilfe kernphysikalischer Prozesse, um die Langzeitgefährdung des nuklearen Abfalls auf technisch kontrollierbare Zeiträume von beispielsweise 1000 Jahren zu verkürzen [21]. Neben der Umwandlung dieser Isotope in thermischen oder schnellen Reaktoren können auch unterkritische Systeme mit externer Neutronenquelle zur Transmutation genutzt werden [22-24].

Iod-129 mit einer Halbwertszeit von 15,7 Millionen Jahren ist eines der Problemnuklide, das zwar im Vergleich zu den Transuranen eine relativ geringe Radiotoxizität besitzt, aber in einer langfristigen Betrachtung aufgrund seiner großen chemischen Mobilität im Endlager dennoch zu berücksichtigen ist [20].

Im Rahmen unserer Arbeiten zur Transmutation wurde bereits die chemische Abtrennung des Iods, das während der Wiederaufbereitung sehr effizient an Silbernitrat-imprägnierter Kieselsäure (AC 6120) abgeschieden werden kann, experimentell untersucht. Es konnte gezeigt werden, daß es von diesem mit Hilfe einfacher chemischer Methoden wieder abgetrennt und für die Transmutation in eine geeignete Targetform überführt werden kann. Die Ergebnisse dieser Studie sind in einem Jül-Bericht [25] dokumentiert worden.

Für die Transmutation von ^{129}I wird in der Literatur bisher nur die neutronen-induzierte Umwandlung zu stabilen Xe-Isotopen diskutiert. Da in der Wiederaufarbeitung neben ^{129}I auch ^{127}I anfällt, müssen die in Gleichung (1) und (2) gezeigten Primärreaktionen mit Wirkungsquerschnitten von 34 bzw. 6,2 barn berücksichtigt werden [26, 27].



Daneben können durch (n, γ)- und (n, 2n)-Reaktionen des Startmaterials sowie der Zwischenprodukte weitere Produkt nuklide gebildet werden.

Das Ziel dieser Arbeit ist, alternativ zur neutronen-induzierten Transmutation die Wechselwirkung mit hochenergetischen Protonen experimentell zu untersuchen. Es kann angenommen werden, daß bei hohen Protonenenergien (> 200 MeV) durch Spallations- und Fragmentierungsreaktionen eine Vielzahl von stabilen, kurzlebigen und evtl. auch langlebigen Produkt-nukliden gebildet wird.

Bisher haben sich nur wenige Studien mit der Wechselwirkung von Protonen mit dem Targetmaterial Iod beschäftigt. Dabei beschränkten sich die Untersuchungen meistens auf die Bestimmung der Ausbeuten einiger Xenon- und Iod-Isotope bei Energien < 100 MeV. Für Energien > 100 MeV existieren nur Anregungsfunktionen für die Produktion ausgewählter Nuklide wie z.B. ^{123}I , ^{124}I und ^{126}I [12].

Daher war das Ziel dieser Studie, den unvollständigen Datensatz mit den neuen experimentellen Wirkungsquerschnitten zu erweitern. Hierzu sind Bestrahlungsversuche an NaI-Targets mit Hilfe der stacked-foil Technik am Synchrotron des Laboratoire National Saturne in Saclay, Frankreich durchgeführt worden. In dieser Studie werden die bei 145, 330, 400, 600, 800 und 2600 MeV ermittelten experimentellen Wirkungsquerschnitte für über 50 protonen-induzierte Reaktionen am Targetelement Iod vorgestellt und mit den vorhandenen unvollständigen Datensätzen verglichen. Weiterhin sollten die gemessenen Wirkungsquerschnitte mit der Vorhersagefähigkeit eines semiempirischen Ansatzes von Silberberg und Tsao [32] überprüft werden.

2. Auswertung der Bestrahlungsversuche

2.1 Bestrahlungsexperimente

Die Bestrahlungsversuche wurden am Synchrotron des Laboratoire National Saturne in Saclay, Frankreich, durchgeführt. In jedem Experiment, an dem verschiedene Arbeitsgruppen beteiligt waren, wurden mehrere Elemente in Form von Folien oder Verbindungen mit Hilfe der stacked-foil Technik bestrahlt. Nach Ende der Bestrahlungen wurden die Stacks in speziellen Behältern mit dem Auto nach Köln transportiert sowie für den Weitertransport nach Jülich bzw. Hannover getrennt. Einzelheiten zum Aufbau des Stacks und zur Durchführung der Bestrahlungsexperimente können der Arbeit von Bodemann [28] entnommen werden. Die für unsere Auswertungen wichtigen Bestrahlungsdaten sind in Tabelle 1 aufgelistet. Die Korrektur der Protonenenergie ist von der Universität Hannover am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZRS) durchgeführt worden. Die Wartezeit ist die Zeit, die zwischen dem Ende der Bestrahlung und der ersten γ -spektrometrischen Messung vergeht. Sie ist entscheidend für die Auswertung möglichst vieler kurzlebiger Produkt nuklide. Daher konnten in dieser Arbeit Nuklide mit Halbwertszeiten um fünf Stunden nur in den Proben des 330, 600 und 2600 MeV-Experimentes nachgewiesen werden. Die Strahlungsdauer die in Abb. 8, schematisch als t_i dargestellt ist, wurde zur Berechnung des Zerfalls während der Aktivierung bzw. Bestrahlung herangezogen.

Tabelle 1: Daten der Bestrahlungsexperimente am Synchrotron in SACLAY.

Protonen- energie [MeV]	Korrigierte E_p [MeV]	Flächen- belegung [g/cm ²]	Beginn der Bestrahlung t_{Bol}	Ende der Bestrahlung t_{Eol}	Strahl- dauer t_i [h]	Warte- zeit t_w [h]
250	145	0,90	09:07:1995 12:30	10:07:1995 08:00	19,50	40,47
330	321	0,90	06:10:1994 10:41	07:10:1994 08:21	21,67	15,05
400	392	0,90	04:10:1994 22:09	06:10:1994 08:04	33,92	41,17
600	595	0,98	19:05:1994 09:39	20:05:1994 11:00	25,35	19,88
800	795	0,98	17:05:1994 21:56	19:05:1994 08:00	34,07	42,58
2600	2540	0,90	10:07:1995 09:54	11:07:1995 07:17	34,07	42,58

2.2 Target

Als Targetmaterial wurde natürliches Iod-127 in Form von Natriumiodid (Suprapur NaI) der Fa. Merck verwendet. In einer Presse wurden Pellets mit einem Durchmesser von 13 mm und einer Masse von 1200 bzw. 1300 mg bei einem Druck von 10 bar hergestellt. Bei der zuvor durchgeführten Reinheitsuntersuchung durch Atomemissionsspektrometrie mittels induktiv-gekoppeltem Plasma (ICP - AES) konnte nur das Element Strontium mit 0,2 ppm nachgewiesen werden. Alle anderen Elemente lagen unter der in Tabelle 2 gezeigten Nachweisgrenze. Die NaI- Pellets wurden in speziell angefertigten Targetdosen aus VA-Stahl luftdicht eingeschlossen (Abb.1) und zusammen mit drei Aluminiumfolien und drei Eisenfolien zu einem Stack kombiniert. Diese Maßnahme diente dem Ausgleich von Rückstoßverlusten und zur Vermeidung von Cross-Kontaminationen. Die mittlere der Aluminium-Folien wurde zur Bestimmung der Flußdichte (siehe Kapitel 2.3.2) herangezogen. Zur Kontrolle der gemessenen Flußdichten wurden die mittleren Eisenfolien mit ausgewertet und stichpunktartig die Wirkungsquerschnitte für protonen-induzierte Reaktionen des Eisen mit wohlbekannten Daten verglichen.



Abbildung 1: NaI-Target

Tabelle 2: Nachweisgrenzen in [mg/kg] der Spurenverunreinigungen im verwendeten NaI.

Al	Ba	Pb	Cd	Ca	Co	Fe	K	Cu	Li	Mg	Mn	Ni	Rb	Tl	Zn
0,34	0,03	0,5	0,1	0,05	0,1	0,05	2	0,08	0,2	0,05	0,08	0,2	2	1	0,1

2.3 γ -Spektroskopie

Insgesamt standen bei den durchgeführten Messungen drei Detektoren zur Verfügung. Da die Detektoren mit einer Abschirmung versehen waren, fiel die Untergrundkorrektur gering aus. Die in unserem Institut verwendeten High Purity Germanium Detektoren (HP-Ge) wiesen einen höheren Einfluß der umgebenen Radionuklide auf, als der Ge/Li-Detektor mit kompakter Bleiburg der Universität Köln (dieser wurde nur für die ersten Messungen bei den Bestrahlungsversuchen von 600 und 800 MeV eingesetzt). Die mit dem Meßwerterfassungssystem Maestro 2 aufgenommenen Spektren wurden mit einer aktuelleren Version, Gamma-Vision, der Firma EG & G Ortec ausgewertet. Dieses Programm erlaubte auch eine Peakentfaltung, so daß eng beieinander liegende Peaks und Doppelpeaks auswertbar waren.

Die Energiekalibrierung und die Bestimmung des Ansprechvermögens (Efficiency) der Detektoren erfolgte mit Hilfe von punktförmigen Standardpräparaten (^{241}Am , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu und ^{60}Co) der Fa. Amersham-Buchler bzw. PTB/Braunschweig. Bei den Messungen des Ansprechvermögens wurde darauf geachtet, daß die meisten Nettoflächen der ausgewerteten Peaks mindestens 10000 Ereignisse umfaßten, damit die statistischen Fehler der Einzelmessungen unter 1 % gehalten wurden. Bei den starken Linien der Standardpräparate wurden in der Regel Peakflächen zwischen 50000 und 150000 erzielt. Das Ansprechvermögen bzw. die Efficiency der einzelnen γ -Linien wurde gemäß Gleichung (3) berechnet.

$$\varepsilon_{\gamma} = \frac{\text{NP}}{I_{\gamma} \cdot A_{\text{ref}} \cdot e^{-\lambda \cdot t_w} \cdot t_M} \quad (3)$$

- ε_{γ} : Ansprechvermögen der γ -Linie
- NP : Nettopeakfläche der γ -Linie
- A_{ref} : Aktivität des Standardpräparats [Bq]
im Referenzzeitpunkt
- λ : Zerfallskonstante [h^{-1}]
- I_{γ} : Verzweigungsverhältnis der γ -Linie
- t_w : Zeit zwischen Referenzzeitpunkt [h]
und Beginn der Messung
- t_M : Dauer γ -spektrometrischen Messung [s]

Die so ermittelten experimentellen Efficiencywerte bei verschiedenen Abständen zwischen Detektor und Probe wurden, wie in den Abbildungen 2 und 3 dargestellt, doppelt-logarithmisch aufgetragen.

Wird der Abstand vergrößert, so sinkt das Ansprechvermögen näherungsweise nach einem $1/r^2$ -Gesetz. Die Funktionen zeigen aber für alle Fälle einen parallelen Verlauf, so daß eine Umnormierung auf eine andere Meßgeometrie in der Regel mit einem einzigen energieunabhängigen Faktor vorgenommen werden kann.

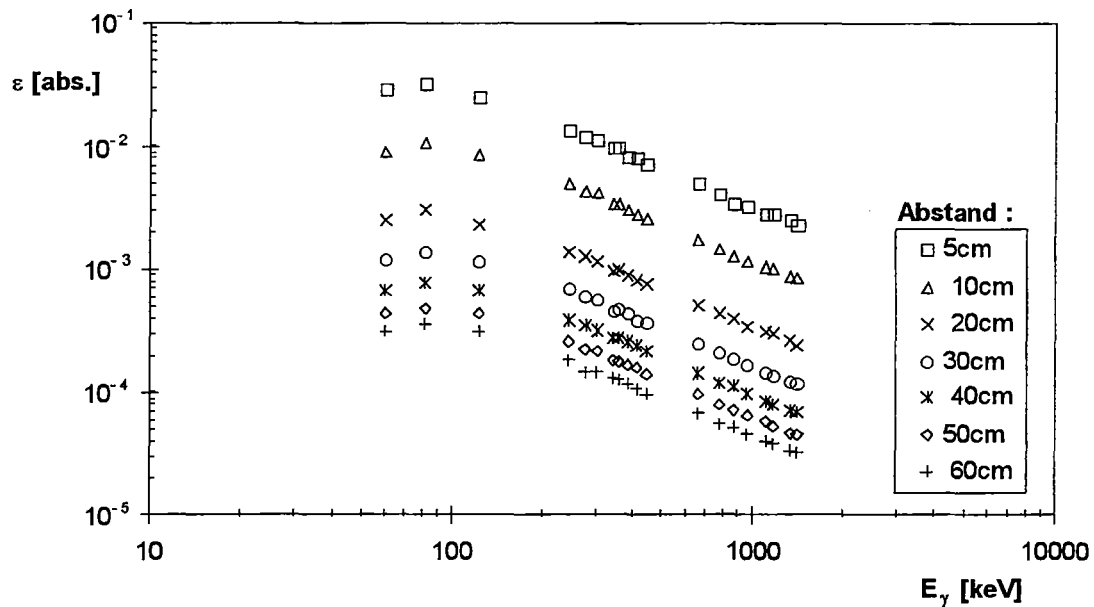


Abbildung 2: Ansprechvermögen eines HP-Ge Detektors (GMX-15200) bei verschiedenen Abständen zwischen Detektorkappe und Präparat.

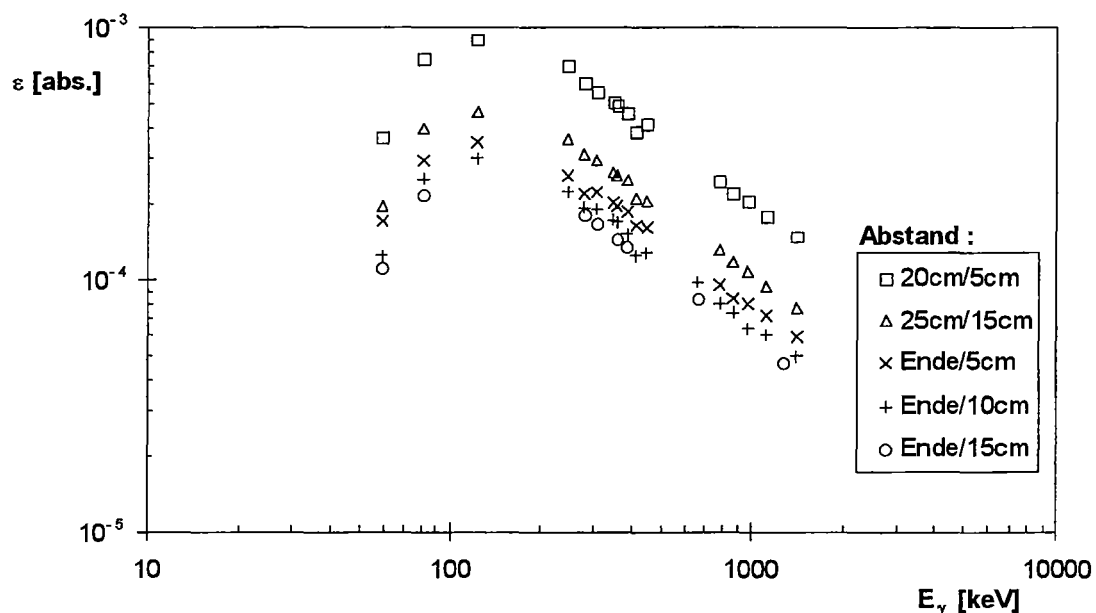


Abbildung 3: Ansprechvermögen des Germanium-Lithium-Detektors mit Bleiburg der Universität Köln bei verschiedenen Abständen zwischen Detektorkappe und Präparat.

Für γ -Energien oberhalb von 245 keV wurde eine lineare Regression bei doppelt-logarithmischer Darstellung durchgeführt. Um Efficiencywerte für γ -Energien kleiner als 245 keV ebenfalls rechnerisch bestimmen zu können, wurden für diesen Energiebereich Polynome dritten und vierten Grades eingeführt. Um dieses zu realisieren, wurden die Energie- und Efficiencywerte logarithmiert und linear aufgetragen. In Abbildung 4 wird dieses anhand eines Beispiels dargestellt. In der computerunterstützten Bearbeitung (MS-Excel) wurde mittels einer Funktion die nötige Trennung der Energiebereiche vorgenommen. Die verwendeten Polynome lieferten, für Nuklide bei denen eine Auswertung von γ -Linien zwischen 80 und 245 keV benötigt wurde, konsistente Ergebnisse. Die Korrelationskoeffizienten lagen in allen Fällen bei 1, die Abweichungen davon betrugen weniger als 10^{-3} .

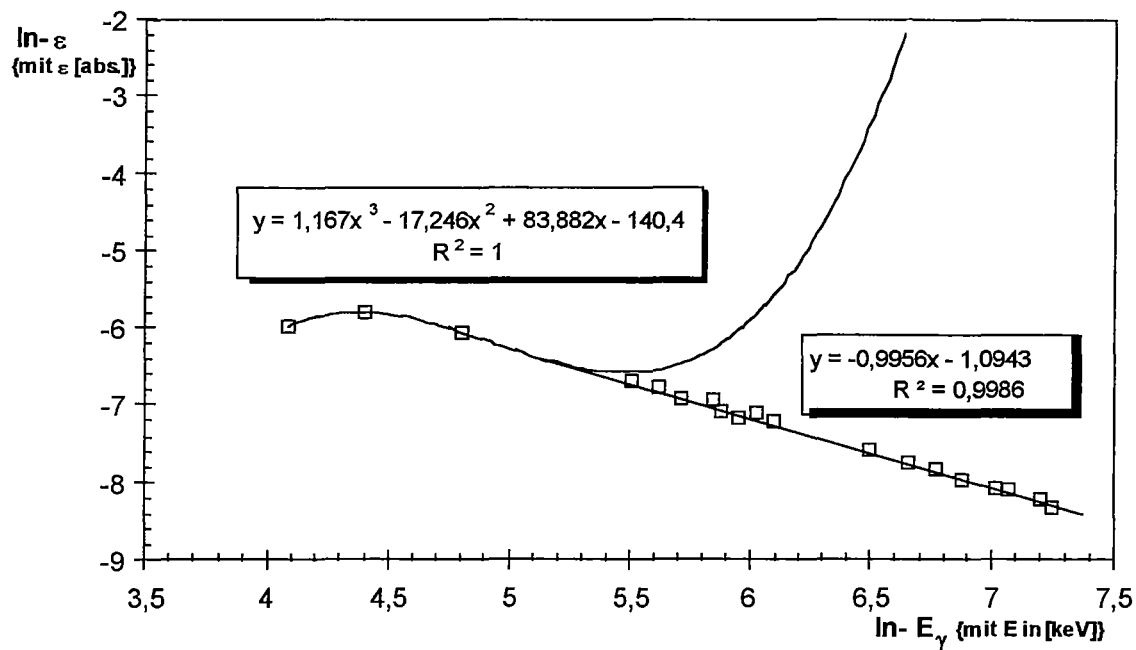


Abbildung 4: Bestimmung der Efficiency für Energien unter und über 245 keV.

1. Regression mittels eines Polynoms für $E_\gamma < 245$ keV

2. Regressionsgerade für γ -Energien > 245 keV

HP-Ge-Germanium-Detektor ; Abstand Präparat-Detektorkappe : 20 cm

2.3.1 Durchführung der Messungen

Bei der Organisation und Durchführung der Messungen wurde darauf geachtet, daß die ausgesuchten Peaks Impulszahlen von mindestens 10000 aufwiesen. Die Meßdauer variierte dabei zwischen 5 Minuten und 3 Tagen. Damit sollte der statistische Fehler der Einzelmessung in der Größenordnung von 1 % gehalten werden. Leider konnte dies nicht in allen Fällen erreicht werden, da die Nuklide in einigen Proben zu geringe Aktivitäten aufwiesen bzw. die Meßdauer zu kurz gewählt wurde. Nuklide mit Impulszahlen um 5000 und darunter sind nach Kapitel 2.4 mit entsprechenden Fehlern betrachtet worden. Die Planung der Messungen wurde nach dem im Natrium-Iodid-Target zu erwartenden Produktnuklid-Repertoire ausgerichtet. Wegen der Vielzahl spektroskopischer Interferenzen wurden die Proben während eines Zeitraums von 8 Monaten bis zu 50 mal gemessen. Die Halbwertszeiten der nachgewiesenen Produkte erstrecken sich von 4,2 Stunden des ^{109}In bis zu 2,9 Jahre des ^{102}Rh .

2.3.2 Flußbestimmung mit Monitorreaktionen

In dieser Arbeit wurden die Flußdichten über Messungen von Monitorreaktionen an Aluminium bestimmt. Dazu wurden die Produktnuklide ^7Be , ^{22}Na und ^{24}Na ausgewertet, deren Anregungsfunktionen gut bekannt sind und der Arbeit von Tobailem et al. [29] entnommen wurden. Nach genauer Massebestimmung der Aluminiumfolie (99,999 % Al) konnte die Protonenflußdichte mittels folgender Gleichung (4) berechnet werden.

$$\Phi = \frac{NP \cdot M_T \cdot e^{\lambda \cdot t_w} \cdot \lambda}{\sigma \cdot A_v \cdot m \cdot I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_i}) \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_M})} \quad (4)$$

- λ : Zerfallskonstante des Produktes
- NP : Zahl der Ereignisse im Nettopeak
- I_γ : Verzweigungsverhältnis der γ -Linie
- ε_γ : Efficiency des Detektors bei der Energie der γ -Linie
- A_v : Avogadro-Konstante ($= 6,022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$)
- M_T : Atomgewicht des Targets ($= 26,98 \text{ g/mol}^{-1}$)
- m : Masse der Probe ($= 0,064 \text{ g}$)
- σ : Wirkungsquerschnitt
- t_M : Dauer der Messung
- t_w : Wartezeit zwischen Ende der Bestrahlung und Beginn der Messung
- t_i : Bestrahlungsdauer

Tabelle 3: Primäre Protonen-Flußdichte der Bestrahlungsexperimente in SACLAY.

Energie [MeV]	korrigierte Energie [MeV]	Strahldauer [h]	Flußdichte [$10^{10} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$]
250	$144 \pm 2,14$	19,50	$0,00779 \pm 0,000339$
330	$321 \pm 0,841$	21,67	$2,0707 \pm 0,0334$
400	$392 \pm 0,827$	33,92	$2,0912 \pm 0,0627$
600	$595 \pm 1,29$	25,35	$1,027 \pm 0,00689$
800	$795 \pm 1,24$	34,07	$3,887 \pm 0,036$
2600	$2540 \pm 2,23$	21,38	$0,1167 \pm 0,00952$

Im Rahmen dieser Arbeit wurden insgesamt sechs Bestrahlungsexperimente (Tabelle 3) ausgewertet, wobei die Flußdichten bei Energien von 600 MeV und 800 MeV im Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZRS) der Universität Hannover bestimmt wurden. Die aufgeführten Fehler sind rein statistische Fehler der Einzelmessungen. Der Gesamtfehler der ermittelten Protonenflußdichten wurde, wie im Kapitel 2.4 näher erläutert, pauschal mit 4 % angesetzt.

2.3.3 Auswertung der γ -Spektren

Die Ermittlung der Halbwertszeit ist eine sichere Methode zur Identifizierung von Radionukliden. Halbwertszeiten, die zwischen einigen Minuten und etwa einem Jahr liegen, können direkt durch die Aufnahme von Umwandlungskurven bestimmt werden. Es ist dazu erforderlich, die Strahlung ein und derselben Probe in geeigneten Zeitabständen unter einheitlichen Meßbedingungen mit einem Strahlendetektor zu registrieren. Wenn sich die Messung über einen längeren Zeitraum erstreckt, sollte die Konstanz der Meßanordnung in jeder Hinsicht gewährleistet sein. Die Zeitdauer der Einzelmessung richtet sich nach der vorhandenen Aktivität. Je größer diese ist, um so kürzer kann bei gleichem Fehler die Meßzeit gewählt werden. Es lassen sich drei Fälle der Halbwertszeitanalyse unterscheiden:

a) Halbwertszeit eines isolierten Nuklids

Der zeitliche Abfall der Aktivität wird mit einem oder mehreren Detektoren verfolgt. Nach Berücksichtigung aller Detektor- und Strahlungsimmanenten Größen trägt man die Aktivität halblogarithmisch als Funktion der Zeit auf. In Abb. 5 und 6 ist die weitere Vorgehensweise ersichtlich, indem ein eingefügter exponentieller Trend die Aktivität zum Ende der Bestrahlung und die zur Identifikation wichtige Zerfallskonstante liefert. Die für die Nuklididentifikation benötigten Kerndaten wurden aus [17, 30] entnommen.

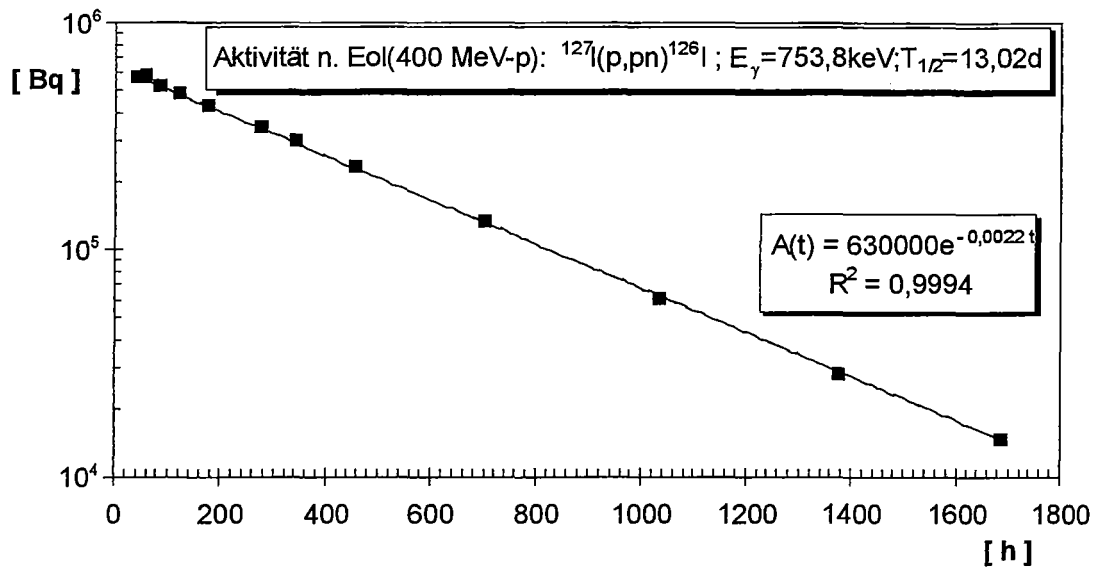


Abbildung 5: Aktivitätsverlauf von ^{126}I nach Bestrahlung mit 400 MeV-Protonen.
Ermittelte Werte : $A_{\text{Eol}} = 630 \text{ kBq}$; $\lambda = 0,0022 \text{ h}^{-1} \Rightarrow T_{1/2} = 13,13 \text{ d}$

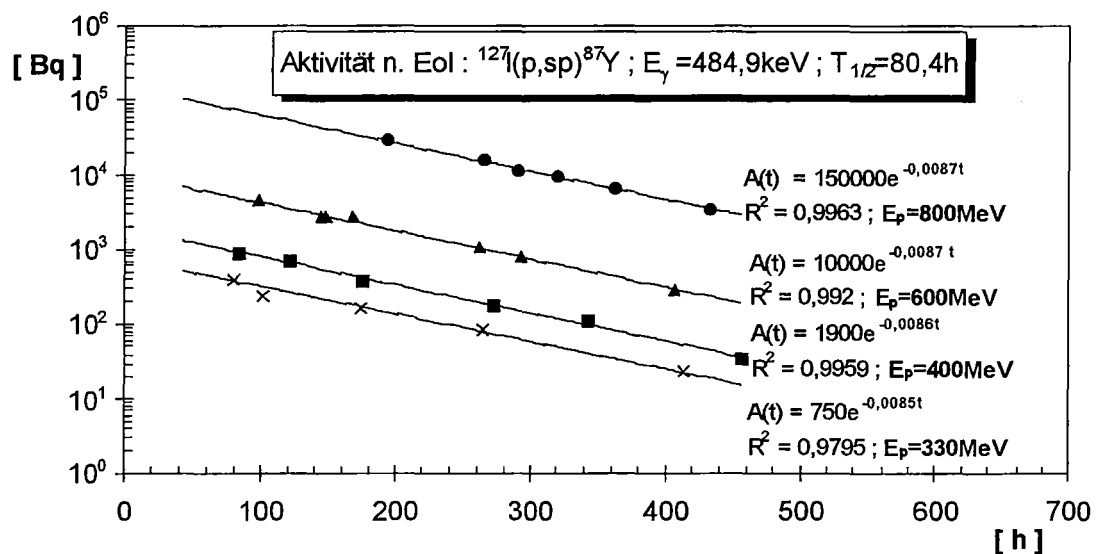


Abbildung 6: Aktivitätsverlauf von Y-87 nach Bestrahlung von Iod.
Ermittelte Werte :

(800MeV) $A_{\text{Eol}} = 150 \text{ kBq}$; $\lambda = 0,0087 \text{ h}^{-1} \Rightarrow T_{1/2} = 79,7 \text{ h}$
(600MeV) $A_{\text{Eol}} = 10 \text{ kBq}$; $\lambda = 0,0087 \text{ h}^{-1} \Rightarrow T_{1/2} = 79,7 \text{ h}$
(400MeV) $A_{\text{Eol}} = 1900 \text{ Bq}$; $\lambda = 0,0086 \text{ h}^{-1} \Rightarrow T_{1/2} = 80,6 \text{ h}$
(330MeV) $A_{\text{Eol}} = 750 \text{ Bq}$; $\lambda = 0,0085 \text{ h}^{-1} \Rightarrow T_{1/2} = 81,5 \text{ h}$

b) Halbwertzeiten mehrerer genetisch unabhängiger Nuklide

Wenn die Quelle mehrere Radionuklide mit identischen bzw. nahe beieinander liegenden γ -Linien besitzt, so ergibt sich eine komplexe Umwandlungskurve. Sie setzt sich additiv aus den Exponentialfunktionen der sich überlagernden Nuklide zusammen. Die Abb. 7 zeigt Umwandlungskurven zweier sich überlagernder Produkt nuklide des Iod-127 mit unterschiedlichen Halbwertzeiten. Die Messung der überlagerten γ -Linie wird solange fortgeführt, bis nur noch die langlebigere Komponente vorhanden ist. Über den dann wieder linear verlaufenden Aktivitätsabfall läßt sich durch Extrapolation und Differenzbildung zunächst nur die Halbwertzeit des kurzlebigeren Nuklids bestimmen. Um eine quantitative Aussage über die A_{EoI} des abgetrennten Nuklids machen zu können, muß die im Anhang A aufgeführten Gleichungen angewandt werden, da bei der beschriebenen graphischen Trennung von den Werten (I_γ , u. $T_{1/2}$) des langlebigeren Produkts ausgegangen wurde. Prinzipiell ist die Zerlegung einer komplexen Umwandlungskurve interferierender γ -Linien nur dann möglich, wenn die Halbwertzeiten sich genügend voneinander unterscheiden.

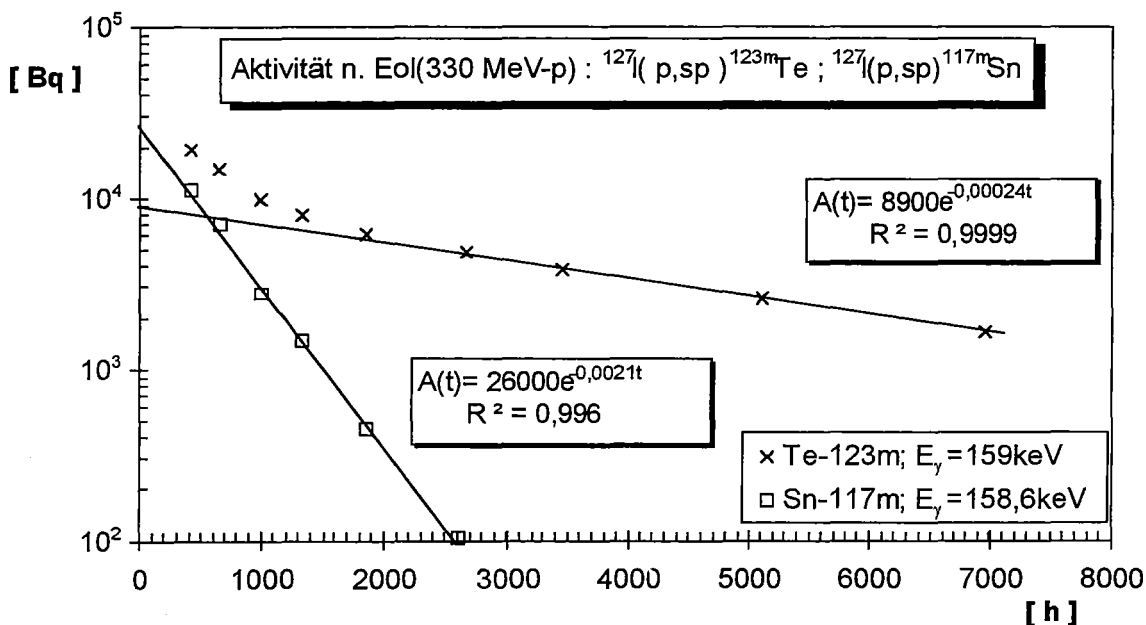


Abbildung 7: Aktivitätsverlauf von ^{117m}Sn ($T_{1/2} = 13,6\text{d}$) und ^{123m}Te ($T_{1/2} = 119,7\text{d}$).

Ermittelte Werte für ^{117m}Sn nach der Trennung von ^{123m}Te :

$$A_{EoI} = 26 \text{ kBq} ; \lambda = 0,0021 \text{ h}^{-1} \Rightarrow T_{1/2} = 13,8 \text{ d}$$

Ermittelte Werte für ^{123m}Te nach dem vollständigen Zerfall von ^{117m}Sn :

$$A_{EoI} = 8,9 \text{ kBq} ; \lambda = 0,00024 \text{ h}^{-1} \Rightarrow T_{1/2} = 120,8 \text{ d}$$

c) Halbwertzeiten genetisch abhängiger Nuklide

Auch bei genetisch voneinander abhängigen Nukliden können die Halbwertzeiten graphisch aus den Umwandlungskurven bestimmt werden. Es wird die Strahlung der Tochtersubstanz allein gemessen und der Meßeffect logarithmisch gegen die Zeit aufgetragen. Für Zeiten, die groß gegenüber der kürzeren Halbwertzeit sind, nähert sich der Kurvenverlauf einer Geraden, aus deren Steigung sich die größere Halbwertzeit ergibt. Durch Extrapolation dieser Geraden und Subtraktion der gemessenen Kurve erhält man eine weitere Gerade, der die Halbwertzeit des kurzlebigeren Nuklids entnommen werden kann. Diese Methode allein gestattet jedoch keine Entscheidung, welchem Nuklid die größere und welchem die kleinere Halbwertzeit zuzuschreiben ist. Erst die chemische Trennung der beiden Nuklide oder die gesonderte Messung der Muttersubstanz ermöglicht eine Zuordnung. Alle in dieser Arbeit gemessenen γ -Linien der Produktnuklide befanden sich im transienten Equilibrium, so daß sie direkt zur Bestimmung von Halbwertzeit und A_{EoI} der Muttersubstanz herangezogen werden konnten.

2.3.4 Berechnung von Wirkungsquerschnitten aus γ -spektrometrischen Messungen

Die zeitliche Entwicklung der Aktivität eines Produktnuklids in einer bestrahlten Probe (Target) ist in Abbildung 8 schematisch dargestellt. Während der Bestrahlung erfolgt ein Aufbau der Aktivität, die nach dem Ende des Experiments gemäß dem radioaktiven Zerfall des Nuklids abnimmt. Es hat sich als zweckmäßig erwiesen, sich bei der Auswertung von γ -Spektren zunächst auf die Aktivität zum Ende der Bestrahlung (A_{EoI}) zu beziehen. Ein Vergleich der A_{EoI} -Werte verschiedener Messungen der gleichen Probe gibt Aufschluß über die Konsistenz der Messungen, da die A_{EoI} im Idealfall reproduzierbar sein müßte.

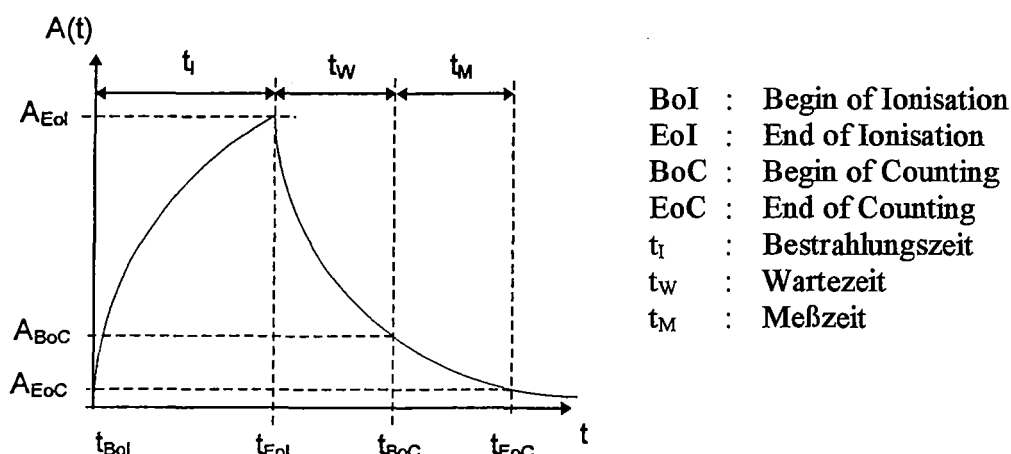


Abbildung 8: Entwicklung der Aktivität eines Radionuklids in einem Target während und nach der Bestrahlung.

Der Aktivitätsaufbau während einer Bestrahlung wird beschrieben durch die Differentialgleichung (5).

$$\frac{dN_P}{dt} = \sigma \cdot \Phi \cdot N_T - \lambda \cdot N_P \quad (5)$$

N_P : Zahl der Nuklide des Produktes P
 N_T : Zahl der Atome des Targets T
 σ : Wirkungsquerschnitt
 Φ : Teilchenflußdichte
 λ : Zerfallskonstante des Produktes P

Die Gleichung (5) kann unter der Anfangsbedingung $N_P(t=0) = 0$ integriert werden und liefert als Lösung die Aktivierungsgleichung (6).

$$N_P(t) = \frac{\sigma \cdot \Phi}{\lambda} \cdot N_T \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad (6)$$

Die Zahl der Targetatome kann durch die Flächenbelegung bzw. die Probenmasse ausgedrückt werden (Gl. 7).

$$N_T = \frac{A_v}{M_T} \cdot F \cdot \xi = \frac{A_v}{M_T} \cdot m \quad (7)$$

A_v : Avogadro-Konstante ($= 6,022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$)
 M_T : Atomgewicht des Targets [g/mol⁻¹]
 m : Masse der Probe [g]
 F : Fläche der Probe [cm²]
 ξ : Flächenbelegung [g/cm²]

Die Aktivität zum Ende der Bestrahlung berechnet sich somit gemäß folgender Gleichung (8).

$$A_{Eol} = \lambda \cdot N_P(t_i) = \sigma \cdot \Phi \cdot \frac{A_v}{M_T} \cdot m \cdot f(t_i) \quad (8)$$

$$f(t_i) = 1 - e^{-\lambda t_i}$$

t_i : Bestrahlungsdauer
 $f(t_i)$: beschreibt Aufbau und Zerfall des Nuklids während der Bestrahlung

Während einer γ -spektrometrischen Messung werden von einem Detektor γ -Quanten der gleichen Energie als Peak registriert. Die Zahl der untergrundkorrigierten Ereignisse im Nettopeak ist proportional zur über die Meßdauer integrierten Aktivität des Produktnuklids in einer Probe (Gl. 9).

$$\begin{aligned}
 NP &= I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot \int_{t_{BoC}}^{t_{EoC}} A(t) \cdot dt = I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot A_{BoC} \cdot h(t_M) \\
 &= I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot A_{EoC} \cdot g(t_W) \cdot h(t_M) \\
 h(t_M) &= \frac{1}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_M}) \\
 g(t_W) &= e^{-\lambda \cdot t_W}
 \end{aligned} \tag{9}$$

- NP : Zahl der Ereignisse im Nettopeak
- I_γ : Verzweigungsverhältnis der γ -Linie
- ε_γ : Efficiency des Detektors bei der Energie der γ -Linie
- t_{BoC} : Beginn der Messung
- t_{EoC} : Ende der Messung
- A_{BoC} : Aktivität zum Beginn der Messung
- A_{EoC} : Aktivität zum Ende der Messung
- t_M : Dauer der Messung
- t_W : Wartezeit zwischen Ende der Bestrahlung und Beginn der Messung
- $h(t_M)$: berücksichtigt den Zerfall des Nuklids während der Messung
- $g(t_W)$: berücksichtigt den Zerfall des Nuklids zwischen Ende der Bestrahlung und Beginn der Messung

Nach A_{EoC} aufgelöst ergibt sich Gleichung (10):

$$A_{EoC} = \frac{NP}{I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot g(t_W) \cdot h(t_M)} \tag{10}$$

Durch Gleichsetzen von Gleichung (8) und (10) erhält man Gleichung (11) zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten aus dem Ergebnis einer γ -spektrometrischen Messung.

$$\sigma = \frac{NP \cdot M_T}{\Phi \cdot A_v \cdot m \cdot I_\gamma \cdot \varepsilon_\gamma \cdot f(t_i) \cdot g(t_W) \cdot h(t_M)} \tag{11}$$

2.4 Allgemeine Fehlerbetrachtung

In dieser Arbeit sind für die berechneten Wirkungsquerschnitte die absoluten Fehler angegeben, die sich aus dem Beitrag verschiedener Fehlerquellen zusammensetzen und im folgenden diskutiert werden. Als Grundlage der Fehlerbetrachtung dienten die folgenden Punkte, deren Zusammenstellung der Arbeit von Bodemann [28] und Lüpke [15] entnommen wurde. Dabei wird die quantitative Abschätzung des Beitrags einzelner Fehlerquellen zur Gesamtunsicherheit nur für den allgemeinen Fall gegeben. Im Einzelfall können die tatsächlichen Fehlergrößen erheblich davon abweichen, worauf an den relevanten Stellen in Kapitel 3 explizit hingewiesen wird.

a) Unbestimmtheit der Zahl der Targetatome im Strahl

In diesen Fehler geht die Unsicherheit von Targetdicke bzw. -masse ein. Ein Fehler in dieser Größe kann sowohl zu falschen Energieberechnungen als auch zu fehlerhaften Wirkungsquerschnitten führen. Mehrmaliges Wiegen der NaI-Pellets ergab eine Abweichung der Einzelmessungen $< 2\%$. Probleme der Massenbestimmung bei den 600 und 800 MeV-Targets (Auseinanderbrechen des NaI-Pellet nach Öffnen der Hülldose) ließen einen höheren Fehler erwarten. Allgemein wurden die Fehler der Massenbestimmung eher konservativ angenommen, um etwaig unterschlagene Fehlerquellen zu kompensieren. Für die 145, 330, 400 und 2600 MeV-Targets wurde demnach ein Fehler von 3% und für die 600 und 800 MeV-Targets ein Fehler von 5% angenommen.

b) Konkurrenzreaktionen an Verunreinigungen im Targetmaterial

Das verwendete Targetmaterial wurde mit dem höchst verfügbaren Reinheitsgrad benutzt. Wie in Kapitel 2.2 beschrieben konnte nur Sr mit 0,2 ppm als Spurenverunreinigung festgestellt werden. Aufgrund der geringen Konzentration war der Beitrag dieser Verunreinigung zu den Kernreaktionen der Haupttargetelemente (Na, I) zu vernachlässigen.

c) Schwankung der Strahlenintensität während der Bestrahlung

Die Auswirkung dieser Schwankungen auf die am Ende der Bestrahlung produzierten Aktivitäten wurde, in Übereinstimmung mit anderen Arbeiten [15, 28], pauschal mit 1% geschätzt.

d) Fehler des Ansprechvermögens der benutzten Detektoren

Der Fehler der Efficiency-Funktionen setzt sich aus den Unsicherheiten der Standardpräparate und dem statistischen Fehler der Efficiency-Messung zusammen. Der Beitrag dieser Fehlerquelle wurde mit 5% geschätzt.

e) Detektorgeometrie

Für die drei verwendeten Detektoren (HP-Ge, Ge/Li) wurden Efficiency-Kurven für verschiedene Abstände zwischen Fenster und Probe aufgenommen. Eine Abweichung von diesen Maßen bei den Messungen der Targets oder ein sonstwie gearteter Einfluß auf die Meßanordnung wird mit einem Fehler von 1% angenommen.

f) Spektrometrische Interferenzen

Das Verfahren zur Entfaltung von Überlagerungen wird im Anhang A dargelegt. Bei den in dieser Arbeit vorgenommenen Trennungen von einem bis maximal drei Nukliden wurde dem stat. Fehler der Einzelmessung ein Fehler von 5-15% aufsummiert.

g) Beitrag von Sekundärteilchen

Die Korrektur des Sekundärteilchenanteils an der Nuklidproduktion in den Hochenergie-Experimenten wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt. Vorab läßt sich jedoch folgendes sagen: der Beitrag steigt mit zunehmender Protonenenergie; der Beitrag ist für große Abstände zwischen Target- und Produktmassenzahl relativ gering (um 5%). Für Produkte in der Nähe der Targetmasse ist eine deutlich Korrektur möglich (vgl. Kapitel 3.1.1).

h) Fehler der Flußdichtebestimmung

Die Unsicherheit der Flußbestimmung setzt sich aus dem Fehler der gemessenen Produktaktivität (2%), der Massenbestimmung des Al-Targets (2%), der verwendeten Monitorwirkungsquerschnitte [29] (2%) zur Interpolation und der Protonenenergie (1%) zusammen. Dazu addierte sich noch der statistische Fehler, welches einen Gesamtfehler von 4% ergab.

i) Fehler der benutzten Kerndaten

Da in den Quellen [17, 30] keine Unsicherheiten angegeben wurden, konnte diese Fehlerquelle nicht quantitativ berücksichtigt werden. Wurden für ein Nuklid mehrere γ -Linien ausgewertet, so fließt der Fehler der Verzweungsverhältnisse in den Fehler der Reproduzierbarkeit ein.

j) Selbstabsorption niederenergetischer γ -Quanten im Target

Die Selbstabsorption der γ -Quanten wurde in den NaI-Targets berücksichtigt. Der absorbierte Anteil r_{abs} der γ -Quanten wurde nach Gleichung (12) ermittelt:

$$r_{\text{abs}} = 1 - \frac{1}{\xi} \int d\xi' e^{-\mu\xi'} = 1 - \frac{1 - e^{-\mu\xi}}{\mu \cdot \xi} \quad (12)$$

r_{abs} : in der Probe absorbierte Anteil der γ -Quanten

μ : Absorptionskoeffizient

ξ : Flächenbelegung der Probe

Die Absorptionskoeffizienten wurden der Arbeit von Storm und Israel entnommen [33]. In den NaI-Targets ($\xi \approx 0,98 \text{ g/cm}^2$) wurde bis zu 33 % der niederenergetischen γ -Strahlung (^{57}Co , $E_\gamma = 122 \text{ keV}$) absorbiert.

k) Statistische Fehler der Einzelmessungen

Der statistische Fehler der Ereignisse im Nettopeak bei den γ -spektrometrischen Auswertungen wurde der verwendeten Software (Gamma-Vision) entnommen. Dieser betrug, bei den hier gemessenen Vollenergie-Peaks mit untergrundkorrigierten Impulszahlen > 10000 , ca. 1%. Bei Werten um 5000 Ereignisse konnte er konservativ mit 5% angenommen werden. Wurden Impulszahlen < 1000 registriert, stieg der Fehler auf 10 - 20%. Die genannten Fehler manifestieren sich in den ermittelten Halbwertszeiten (Nuklididentifikation) und übertrugen sich auf die rechnerisch bestimmte Aktivität zum Ende der Bestrahlung. Die danach berechneten Wirkungsquerschnitte wiesen somit eine Standardabweichung vom Mittelwert in Höhe von 1 bis max. 16% auf.

Der **Gesamtfehler** ergab sich aus den Einzelfehlerquellen nach dem Gesetz der Fehlerfortpflanzung.

3. Ergebnisse und Diskussion

3.1 Wirkungsquerschnitte protonen-induzierter Kernreaktion an ^{127}I und Vergleich mit Literaturwerten

3.1.1 Allgemeines

In dieser Arbeit konnten mit Hilfe der Gammaspektroskopie über 260 Wirkungsquerschnitte bestimmt werden, die in Tabelle 5, Anhang B, aufgeführt sind. Durch protonen-induzierte Reaktionen des Typus (p,pxn) bis (p,41p87n) betrug der Massenunterschied zwischen Target und Produkt bis zu 99 Einheiten. Insbesondere bei dem Hochenergieexperiment von 2600 MeV wurden die Wirkungsquerschnitte für 70 protonen-induzierte Reaktionen ermittelt. Dagegen konnten zum Vergleich nur 17 Wirkungsquerschnitte für Produktnuklide bei einer Energie von 145 MeV bestimmt werden. Das Literaturstudium zeigt, daß sich nur wenige Autoren mit der Wechselwirkung von Protonen mit dem Targetmaterial Iod beschäftigt haben. Dabei beschränkten sich die Untersuchungen meistens auf die Ausbeuten einiger Xenon- und Iod-Isotope bei Energien < 100 MeV [12]. Für Energien > 100 MeV existieren nur wenige Anregungsfunktionen für die Produktion von Radionukliden aus Iod. Es werden lediglich einige Wirkungsquerschnitte für die Produktion von ^{127}Xe , ^{125}Xe , ^{123}Xe , ^{121}Xe , ^{126}I , ^{124}I , ^{123}I , ^{121}I , ^{120}I und ^{118}Te angegeben [12].

Für die Energie von 600 MeV bietet sich zum Vergleich die Arbeit von Hegedüs et al. [8] aus dem Jahr 1977 an, wo insgesamt 72 Wirkungsquerschnitte angegeben sind. Da dort die Quantifizierung 10 Minuten nach Bestrahlungsende erfolgte, wurden im Vergleich zur vorliegenden Arbeit auch viele Produktnuklide mit kürzeren Halbwertszeiten bestimmt. Der direkte Vergleich bietet sich für insgesamt 30 Wirkungsquerschnitte an. In Abb. 9 sind die Verhältnisse unserer experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte, zu den aus der Arbeit von Hegedüs et al. [8] ermittelten, für die Protonenenergie von 600 MeV dargestellt. Die Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte sind in Abhängigkeit von der relativen Target-Produkt-Massendifferenz $(A_T - A_P)/A_T$ aufgetragen. Bei der Interpretation der Daten ist zu berücksichtigen, daß die Fehler beider experimenteller Daten in die Berechnung mit eingegangen sind, die in Abb. 9 in Form von Fehlerbalken dargestellt sind. Man erkennt, daß für die meisten Produktnuklide eine mehr oder weniger gute Übereinstimmung der gemessenen Wirkungsquerschnitte zu beobachten ist, wobei die meisten Werte zwischen 0.6 und 1.2 liegen. Nimmt man den untersten Wert für das Produktnuklid $^{118\text{m}}\text{Sb}$ mit 0.08 ± 0.02 und den höchsten Wert für das Produktnuklid $^{101\text{m}}\text{Rh}$ mit 4.48 ± 1.69 aus der vergleichenden Betrachtung heraus - die deutlich von den anderen Daten abweichen - so beträgt der arithmetische Mittelwert für die restlichen Produktnuklide 1.04 ± 0.116 ($= 11,1 \%$).

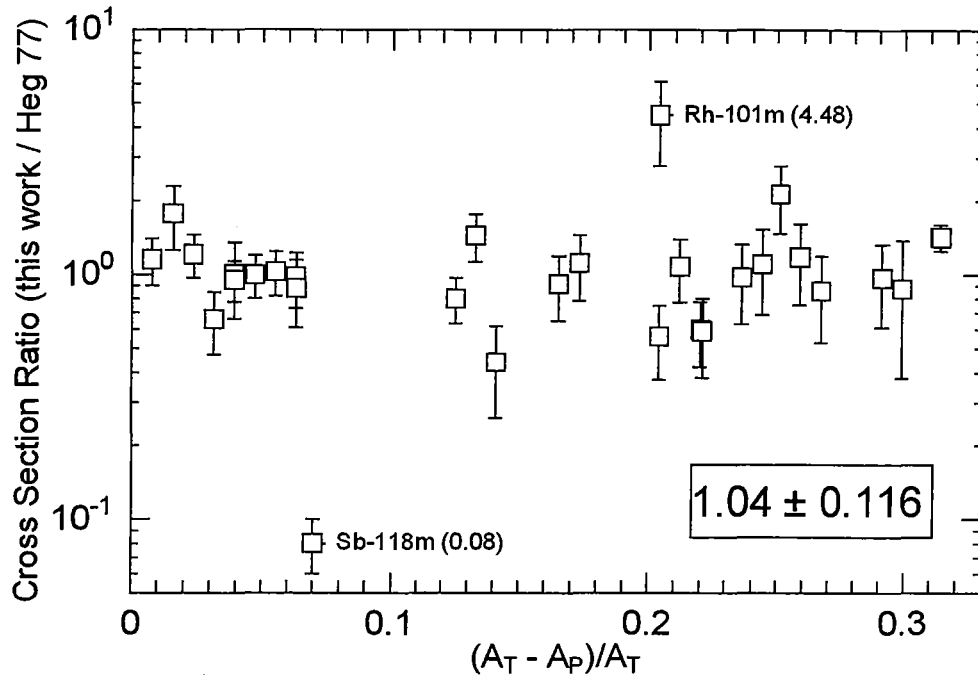


Abbildung 9: Verhältnisse der exp. Wirkungsquerschnitte bei 600 MeV aus dieser Arbeit und von Heg 77 [8] in Abhängigkeit zur relativen Target-Produkt- Massendifferenz.

Als Fehler wurde hier die $(n-1)$ -gewichtete Standardabweichung verwendet. In den folgenden graphischen Darstellungen einiger ausgewählter Anregungsfunktionen werden die Ergebnisse dieser Arbeit mit [THIS] gekennzeichnet. Vergleichend herangezogene Werte anderer Arbeiten sollen die Konsistenz der ermittelten Wirkungsquerschnitte belegen. Die mit Hilfe eines semiempirischen Ansatzes von Silberberg und Tsao [32] berechneten Anregungsfunktionen [TS93] werden in Kap. 3.1.7 diskutiert. Mit Ausnahme des Experimentes bei 145 MeV, das aufgrund der niedrigen Flußdichte zu größeren Fehlern bei der Bestimmung der Wirkungsquerschnitte geführt hatte, besitzen die Daten bei den höheren Energien einen Fehler von etwa 15 %. Da es sich beim NaI-Target mit einer Massenbelegung von 0.9 g/cm^2 um ein Dünntarget handelt, kann der Einfluß von Sekundärteilchen, wie z.B. Protonen und Neutronen, in dieser Arbeit bis Energien von 800 MeV vernachlässigt werden. Beim 2600 MeV Experiment sollte der Einfluß deutlich zunehmen. Da in dieser Arbeit keine Korrektur durchgeführt wurde, wie sie in der Arbeit von Lüpke [15] beschrieben worden ist, kann man davon ausgehen, daß die Wirkungsquerschnitte bei 2600 MeV aufgrund zu hoch angenommener Protonenflüsse (bestimmt durch Monitorreaktionen an Al) zu klein sind. Umgekehrt werden die Wirkungsquerschnitte der Produktnuclide durch Sekundärteilcheneffekte mit zunehmender Energie ansteigen, so daß im günstigsten Fall eine Kompensation beider Effekte auftritt. Die Korrektur hängt insbesondere von der relativen Target-Produkt-Massendifferenz $(A_{\text{Target}} - A_{\text{Produkt}})/A_{\text{Target}}$ ab. Die Sekundärteilchenkorrektur liegt unter 10 % für alle Hochenergieprodukte mit relativen Massendifferenzen größer als 0.3 (d.h. alle Produktnuclide des ^{127}I mit Massenzahlen $A \leq 90$) und für kleinere Massendifferenzen entsprechend höher. Speziell für Produktnuclide die über

(p,n), (p,pn) und (p, α) Reaktionen gebildet werden, kann eine Korrektur von über 90 % im Hochenergiebereich angenommen werden [15, 16].

3.1.2 Produktnuklide ^{127}Xe , ^{125}Xe , und ^{122}Xe aus ^{127}I

Die Reaktionen $^{127}\text{I}(p,n)^{127}\text{Xe}$, $^{127}\text{I}(p,3n)^{125}\text{Xe}$ und $^{127}\text{I}(p,6n)^{122}\text{Xe}$ wurden im Energiebereich unter 100 MeV von mehreren Autoren untersucht. Den meisten Arbeiten ist gemeinsam, daß nach der Bestrahlung die gasförmigen Produktnuklide des Xenons chemisch abgetrennt und γ -spektrometrisch untersucht wurden. In der vorliegenden Arbeit wurde keine Abtrennung durchgeführt. Aufgrund der Konstanz der gemessenen Halbwertszeit von 36.08 Tagen des relativ langlebigen ^{127}Xe (36,41 Tage [17]) kann geschlossen werden, daß keine Verluste während eines Zeitraumes von mehreren Monaten auftraten.

Die Anregungsfunktion $^{127}\text{I}(p,n)^{127}\text{Xe}$ in Abbildung 10 zeigt nach dem steilen Anstieg oberhalb der Schwellenenergie ein deutliches Maximum bei 10 MeV. Für Energien größer 10 MeV (bis 300 MeV) ist ein steiler Abfall des Wirkungsquerschnittes um mehr als zwei Größenordnungen zu beobachten. Die neuen Ergebnisse dieser Arbeit zeigen zu höheren Energien einen stetigen Anschluß. Im Hochenergiebereich (> 300 MeV) zeigt die Anregungsfunktion einen annähernd konstanten Verlauf. Die Werte der Arbeit von Narang [1] unter 100 MeV sind wenig konsistent mit denen anderer Autoren. Für höhere Energien war der Literatur nur ein Wirkungsquerschnitt bei 500 MeV zu entnehmen, der recht gut mit unseren gemessenen Werten übereinstimmt. Dieser Datenpunkt von Ohkubo [7] liegt grob geschätzt um etwa 50 % niedriger als die Daten dieser Arbeit. Wie man aus der Anregungsfunktion in Abb. 10 entnehmen kann, ist ^{127}Xe ein typisches Niederenergieprodukt, dessen Maximum bei 10 MeV durch eine Direkt- oder Compoundkernreaktion des Typ (p,n) erklärt werden kann. In dem Energiebereich, in dem die Präequilibriumreaktionen dominieren, nehmen die Wirkungsquerschnitte mit zunehmender Energie stark ab, während die Abnahme für höhere Energien, wo Spallations- und Fragmentierungsreaktionen ablaufen, etwas flacher wird. In diesem Energiebereich (> 200 MeV) fällt der Einfluß von Sekundärteilchen besonders bei Target-Produkt-Kombinationen mit einer geringen Massendifferenz stark ins Gewicht. Ohkubo et al. [7] geht davon aus, daß sein gemessener Datenpunkt bei 500 MeV (1.05 mb) mit einer Sekundärteilchenkorrektur von max. 10 % versehen werden muß. Da unser gemessener Wert von 2.2 mb bei 2600 MeV im Vergleich zu dem Wert bei 800 MeV mit 1.1 mb wieder ansteigt und dies ein signifikantes Zeichen für den Einfluß von Sekundärteilchen ist, kann hier ein Fehler von bis zu 100 % angenommen werden. Selbst mit dieser Korrektur ist unsere gemessene Anregungsfunktion über den gesamten Energiebereich bis 2600 MeV konsistent.

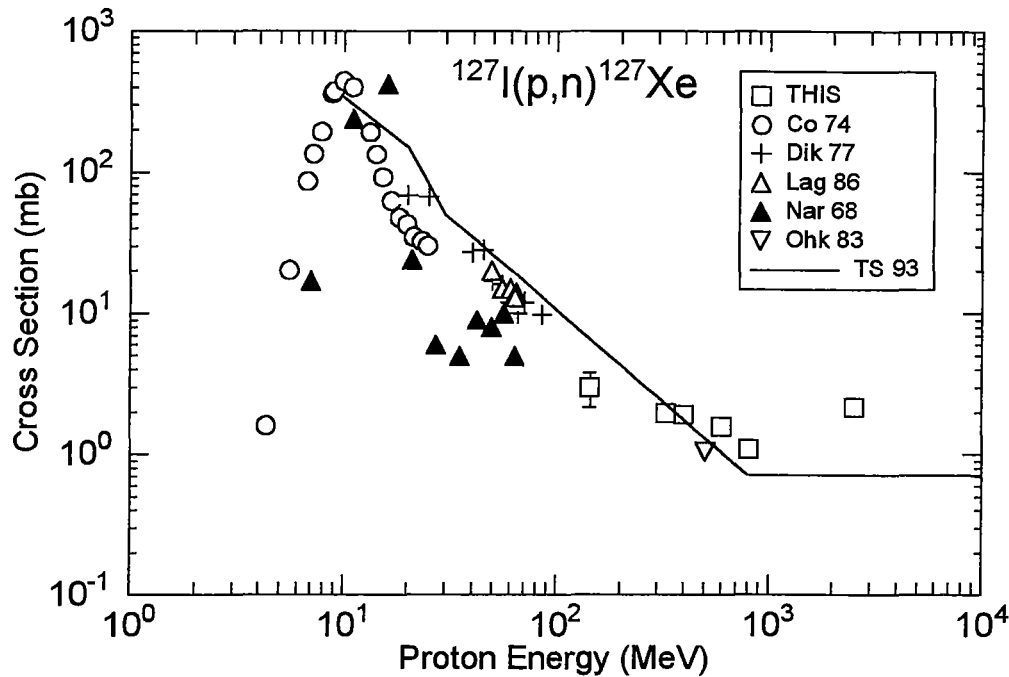


Abbildung 10: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{127}\text{I}(p,n)^{127}\text{Xe}$ und Vergleich mit semiempirischem Ansatz TS 93 [32]. Co 74 [6], Dik 77 [5], Lag 86 [2], Nar 68 [1], Ohk 83 [32], THIS diese Arbeit

Die Anregungsfunktion der Kernreaktion $^{127}\text{I}(p,3n)^{125}\text{Xe}$ ist in Abb. 11 dargestellt. Für den Energiebereich unter 100 MeV wurden nur ausgewählte Quellen zum Vergleich herangezogen. Ausführlicher wird die Anregungsfunktion in [12] beschrieben. Man erkennt wieder, daß nach einem ausgeprägten Maximum von ca. 800 mb bei 30 MeV die Anregungsfunktion exponentiell abfällt. Die Ergebnisse dieser Arbeit (THIS) liegen unter Berücksichtigung der anzunehmenden Fehler (um 15 %) in guter Übereinstimmung mit denen von Ohkubo [7], Hegedüs [8] und Adilbish et. al [10] bestimmten Werte für 500, 590 und 550 MeV und zeigen zusammen mit den Werten unter 100 MeV einen exponentiell fallenden Trend der Anregungsfunktion.

Die Reaktion $^{127}\text{I}(p,6n)^{122}\text{Xe}$ wurde im Energiebereich unter 100 MeV von drei Autoren untersucht, wobei in Abbildung 12 die von Lundqvist et. al [13] ermittelten Daten nicht eingetragen sind. Diese, in der Arbeit von Schopper et al. [12] in graphischer Form dargestellten Daten sind vergleichbar mit denen von Diksic [5] und besitzen bei etwa 70 MeV ein Maximum von ca. 100 mb. Die Daten von Lagunas-Solar [2] besitzen dagegen ein um den Faktor 2 höheres Maximum bei 67 MeV. Zwischen 100 und 550 MeV existieren keine Meßwerte, so daß der Verlauf der Anregungsfunktion nur mit den Daten dieser Arbeit beschrieben werden kann. Unsere Werte zeigen im Energiebereich zwischen 400 und 600 MeV eine gute Übereinstimmung mit denen von Ohkubo [7], Adilbish [10] und Hegedüs [8]. Der Datenpunkt von Hegedüs bei 590 MeV mit 3.5 mb ist mit unserem identisch.

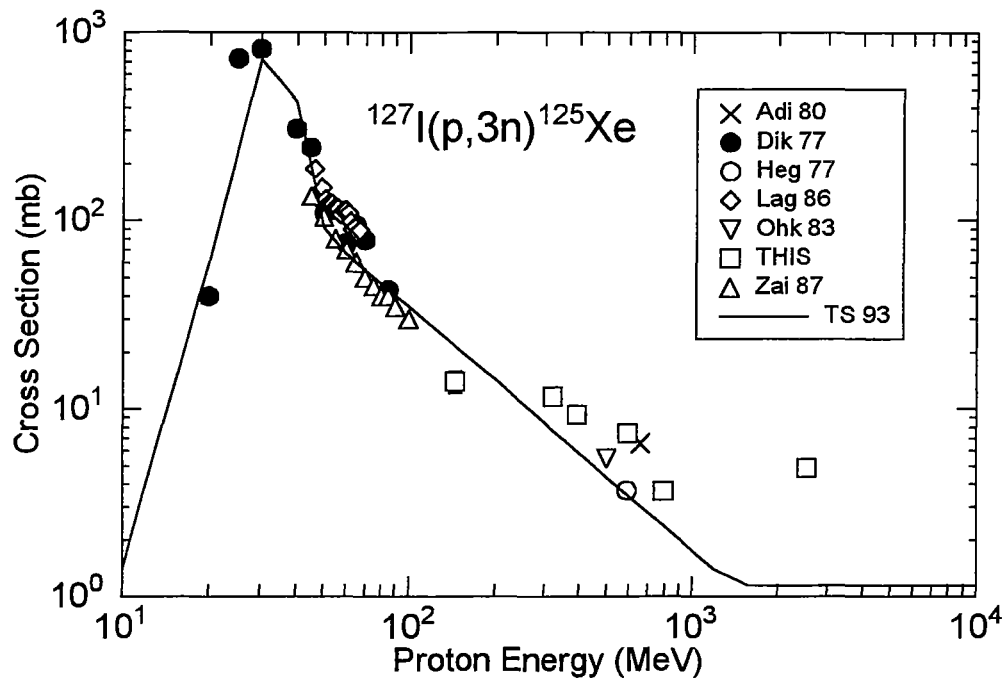


Abbildung 11: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{127}\text{I}(p,3n)^{125}\text{Xe}$ und Vergleich mit semiempirischem Ansatz TS 93 [32]. Adi 80 [10], Dik 77 [5], Heg 77 [8], Lag 86 [2], Zai 87 [4], Ohk 83 [7], THIS diese Arbeit.

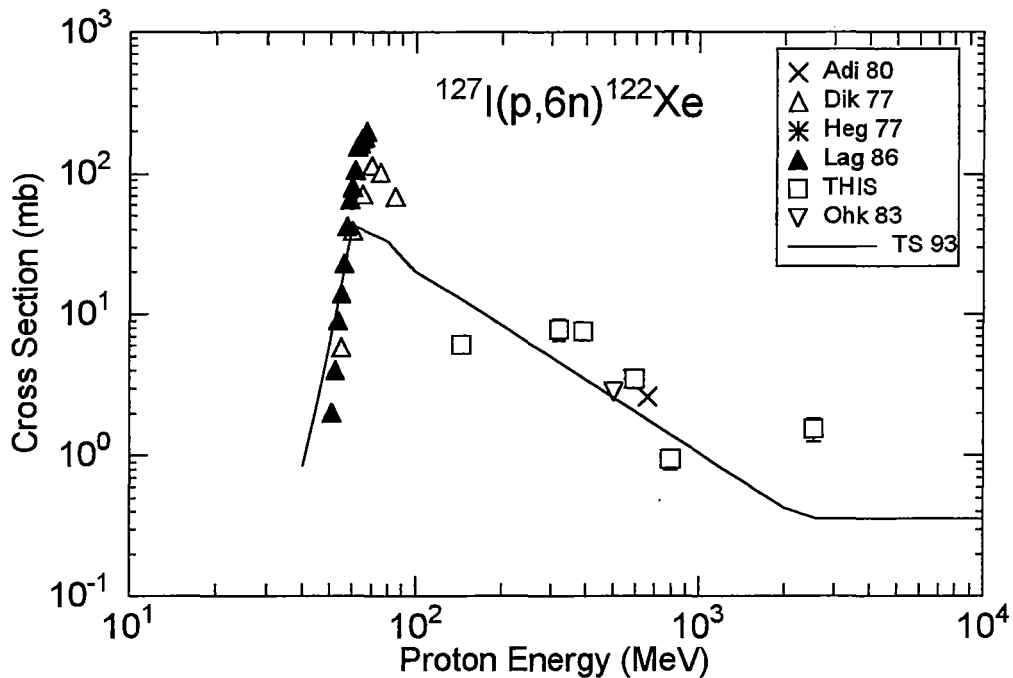


Abbildung 12: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{127}\text{I}(p,6n)^{122}\text{Xe}$ und Vergleich mit semiempirischem Ansatz TS 93 [32]. Adi 80 [10], Dik 77 [5], Heg 77 [8], Lag 86 [2], Ohk 83 [7], THIS diese Arbeit.

3.1.3 Produktnuklide ^{126}I , ^{124}I und ^{123}I aus ^{127}I

Nach der Bestrahlung wurden die über (p,pn) Reaktionen gebildeten Produktnuklide ^{126}I (13.02 d), ^{124}I (4.18 d) und das im Vergleich dazu kurzlebige ^{123}I mit einer Halbwertszeit von 13.2 h nachgewiesen. Die zugehörigen Anregungsfunktionen sind in den Abb. 13 - 15 dargestellt. Die Anregungsfunktion $^{127}\text{I}(p,pn)^{126}\text{I}$ in Abb. 13 zeigt im Energiebereich unter 100 MeV große Diskrepanzen zwischen den Angaben von Diksic [5], Narrang [1] und den in Abb. 13 nicht dargestellten Daten von Sakamoto [18, 12]. Wie schon in der Diskussion der Anregungsfunktion in Abb. 10 bemerkt wurde, scheinen die Daten von Narang [1] deutlich von denen der anderen Autoren abzuweichen; dies gilt auch für die Daten der Reaktion $^{127}\text{I}(p,p3n)^{124}\text{I}$ in Abb. 14. Die neuen Daten für Energien größer als 100 MeV sind konsistent mit denen von Hegedüs [8], Kuznetsova [11], Ladenbauer [3], Ohkubo [7] und Strohal [9]. Die Anregungsfunktion steigt oberhalb der Schwellenenergie von ca. 5 - 10 MeV [12] steil an, um nach einem Durchgangmaximum zwischen 25 - 70 MeV einen Plateauwert von ca. 65 mb anzunehmen. Vergleicht man dazu die Anregungsfunktionen $^{127}\text{I}(p,p3n)^{124}\text{I}$ und $^{127}\text{I}(p,p4n)^{123}\text{I}$ in Abb. 14 und 15, so erkennt man, daß mit zunehmender Massendifferenz des Produktnuklids die Schwellenenergie zu höheren Energien verschoben wird. Nach Erreichen des Maximums fallen dann die Wirkungsquerschnitte mit zunehmender Energie langsam ab. Auch die in dieser Arbeit gemessenen Wirkungsquerschnitte decken sich gut mit denen anderer Autoren. Eine größere Diskrepanz liegt nur in dem Meßwert der Reaktion $^{127}\text{I}(p,p3n)^{123}\text{I}$ bei 800 MeV vor, der deutlich zu niedrig ist, weil zu höheren Energien unser Meßwert bei 2600 MeV sich wieder mit dem von Ladenbauer [3] deckt.

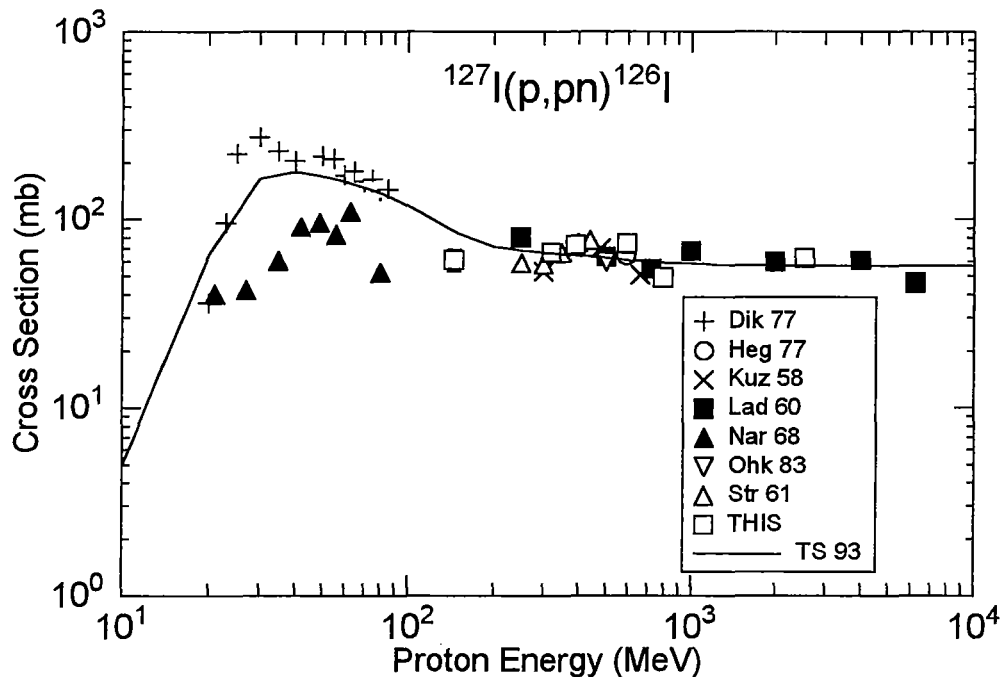


Abbildung 13: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{127}\text{I}(p,pn)^{126}\text{I}$ und Vergleich mit semiempirischem Ansatz TS 93 [32]. Dik 77 [5], Heg 77 [8], Kuz 58 [11], Lad 60 [3], Nar 68 [1], Ohk 83 [7], Str 61 [9], THIS diese Arbeit.

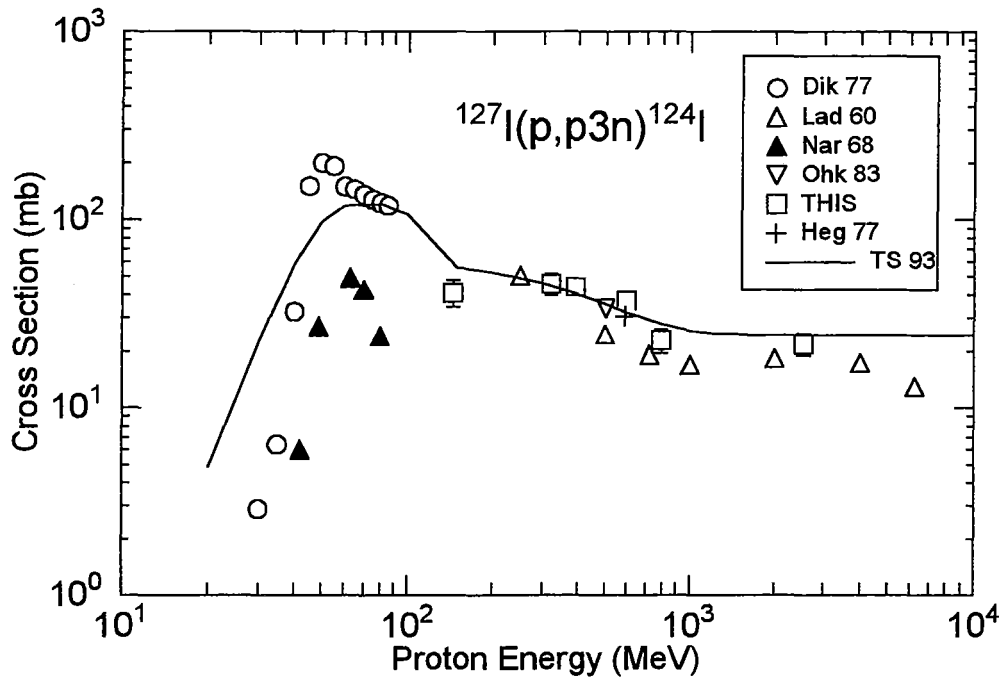


Abbildung 14: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{127}\text{I}(p,p3n)^{124}\text{I}$ und Vergleich mit semiempirischem Ansatz TS 93 [32]. Adi 80 [10], Dik 77 [5], Heg 77 [8], Lag 86 [2], Ohk 83 [7], Zai 87 [4], THIS diese Arbeit.

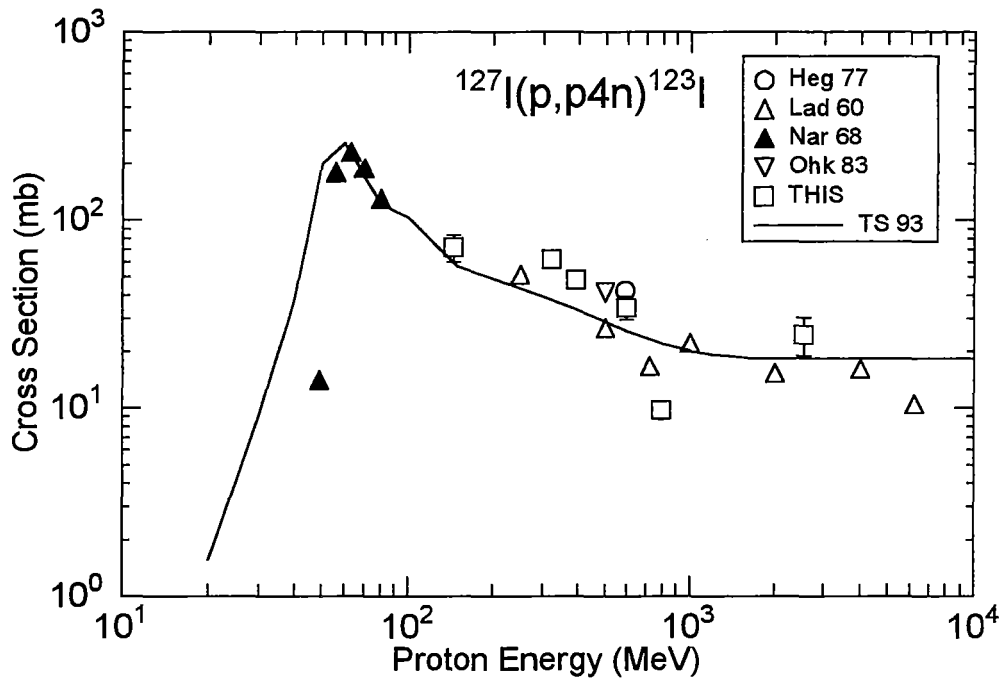


Abbildung 15: Experimentelle Anregungsfunktion der Reaktion $^{127}\text{I}(p,p4n)^{123}\text{I}$ und Vergleich mit semiempirischem Ansatz TS 93 [32]. Adi 80 [10], Dik 77 [5], Heg 77 [8], Lag 86 [2], THIS diese Arbeit.

3.1.4 Anregungsfunktionen ausgewählter Mittelenergieprodukte

Im vorherigen Kapitel wurden einige Anregungsfunktionen von typischen Niederenergieprodukten mit Massendifferenzen kleiner als fünf Nukleonen diskutiert. Dagegen weisen die Anregungsfunktionen von Produkten, die mehr als zehn Masseneinheiten vom Targetnuklid ^{127}I entfernt sind, aber noch nicht zu den Hochenergieprodukten zählen, ein Maximum in diesem Energiebereich auf. Zur Veranschaulichung sind die Produkte ^{111}In , $^{117\text{m}}\text{Sn}$, $^{120\text{m}}\text{Sb}$, $^{121\text{m}}\text{Te}$ und $^{123\text{m}}\text{Te}$, deren Anregungsfunktionen in Abb. 16 dargestellt sind, exemplarisch ausgewählt worden. Zum Vergleich konnten nur die Datenpunkte für die Reaktionen $^{127}\text{I}(p,5\text{pxn})^{111}\text{In}$ und $^{127}\text{I}(p,3\text{pxn})^{120\text{m}}\text{Sb}$ bei 600 MeV aus der Arbeit von Hegedüs [8] herangezogen werden. Für ^{111}In war mit 39.1 ± 4.0 mb eine Abweichung von 5.5 % gegenüber unserem Meßwert von 36.96 ± 4.3 mb zu verzeichnen, und für das Produktnuklid $^{120\text{m}}\text{Sb}$ war der Wirkungsquerschnitt von 6.20 ± 0.6 mb mit unserem (6.38 ± 0.7 mb) nahezu identisch. Aus Abbildung 16 erkennt man, daß die Anregungsfunktionen nach einem flachen Anstieg oberhalb der Schwellenenergie, die vermutlich unter 100 MeV liegt, ein Maximum bei 500 MeV durchlaufen und anschließend wieder langsam abfallen. Aufgrund von Sekundärteilcheneffekten sollten die Meßwerte bei 2600 MeV im Vergleich zu denen der Niederenergieprodukte nur wenig überhöht sein. Die Tendenz der Anregungsfunktionen, die aus Tabelle 5, Anhang B entnommen werden kann, für Produktnuklide im Massenbereich $110 \leq A \leq 100$ zeigt, daß das Maximum und die Schwellenenergie sich mit zunehmender Massenabnahme zu höheren Energien verschiebt.

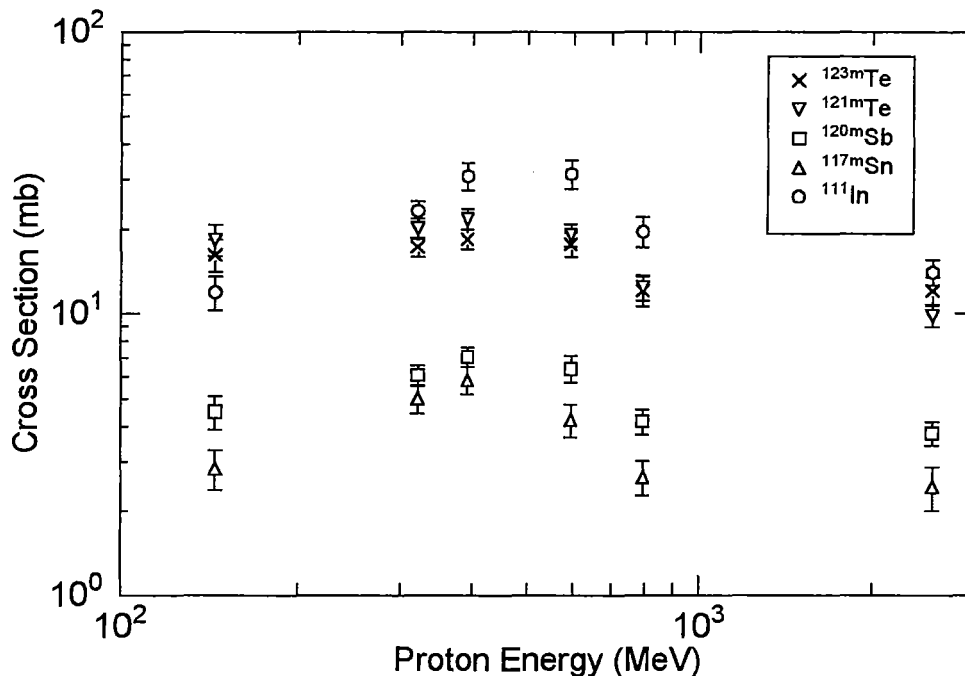


Abbildung 16: Anregungsfunktionen für die Produktion von ^{111}In , $^{117\text{m}}\text{Sn}$, $^{120\text{m}}\text{Sb}$, $^{121\text{m}}\text{Te}$ und $^{123\text{m}}\text{Te}$.

3.1.5 Anregungsfunktionen ausgewählter Hochenergieprodukte

Die Anregungsfunktionen einiger Hochenergieprodukte mit Massenzahlen unter 100 sind in Abb. 17 dargestellt. Am Beispiel der Anregungsfunktion von $^{127}\text{I}(\text{p},15\text{pxn})^{88}\text{Y}$ erkennt man, daß nach Überschreiten der Schwellenenergie von etwa 300 MeV die Wirkungsquerschnitte bis 800 MeV um mehr als zwei Größenordnungen stark ansteigen. Anschließend verflacht die Anregungsfunktion bis 2600 MeV und geht in einem Plateau über. Bei den Produktnukliden ^{90}Nb und ^{97}Ru , deren Schwellenenergien unter 300 bzw. unter 200 MeV liegen, ist der Anstieg der Anregungsfunktionen nicht so steil. Bei diesen Reaktionen überlagern sich noch Präequilibriums- und Spallationsreaktionen. Für Produktnuklide mit Massenzahlen unter 90 nehmen die Wirkungsquerschnitte (vgl. Tabelle 5, Anhang B) im Energiebereich zwischen 800 und 2600 MeV zu. Die Entstehung dieser Produktnuklide ist nur über Spallations- und Fragmentierungsreaktionen zu erklären. Die Schwellenenergien sind bereits so hoch, daß die durch Sekundärteilchen erzeugten Produktnuklide zu vernachlässigen sind. Daher ist anzunehmen, daß die Wirkungsquerschnitte aufgrund von Sekundärteilcheneinflüssen in den Fluß-Monitorreaktionen an Al, vermutlich zu niedrig bestimmt worden sind.

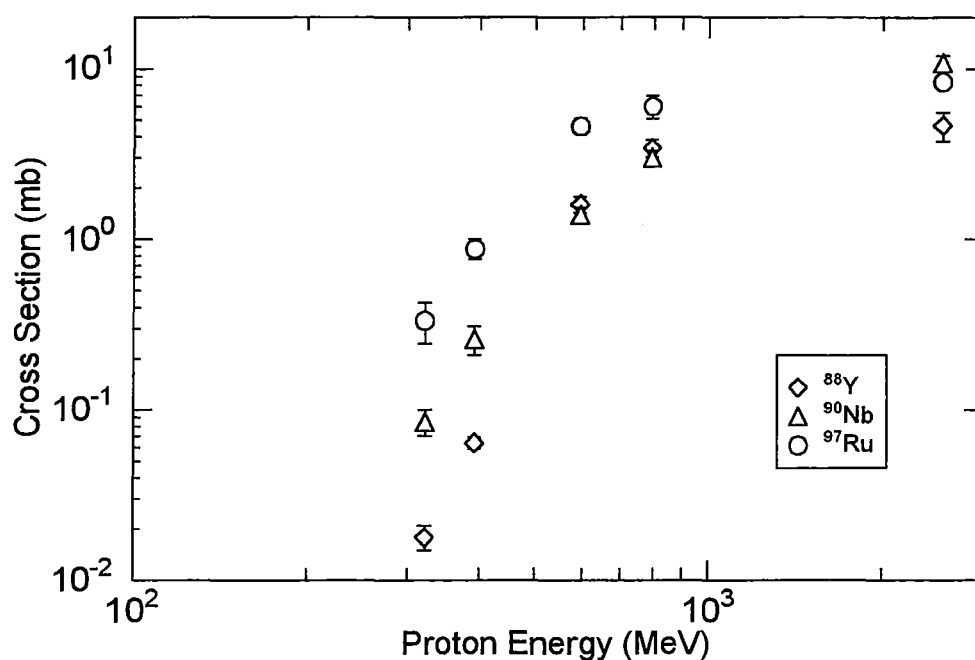


Abbildung 17: Anregungsfunktionen für die Produktion von ^{88}Y , ^{90}Nb und ^{97}Ru .

3.1.6 Massenausbeute-Kurven und Vergleich mit dem Targetelement Barium

In den Massenausbeute-Kurven in Abb. 18 sind die Wirkungsquerschnitte als Funktion der Produktmassenzahl für die Energien 800 und 2600 MeV dargestellt. Zum direkten Vergleich sind auch die aus der Arbeit von Bodemann [28] entnommenen Wirkungsquerschnitte für das Targetnuklid Barium aufgeführt. Der Vergleich bot sich an, weil natürliches Barium ($^{137.33}\text{Ba}_{56}$) eine zum Iod ($^{127}\text{I}_{53}$) um drei Einheiten höhere Kernladungszahl und eine um 10 höhere Massenzahl besitzt und daher nahezu das gleiche Produktnuklidrepertoire erwartet wurde.

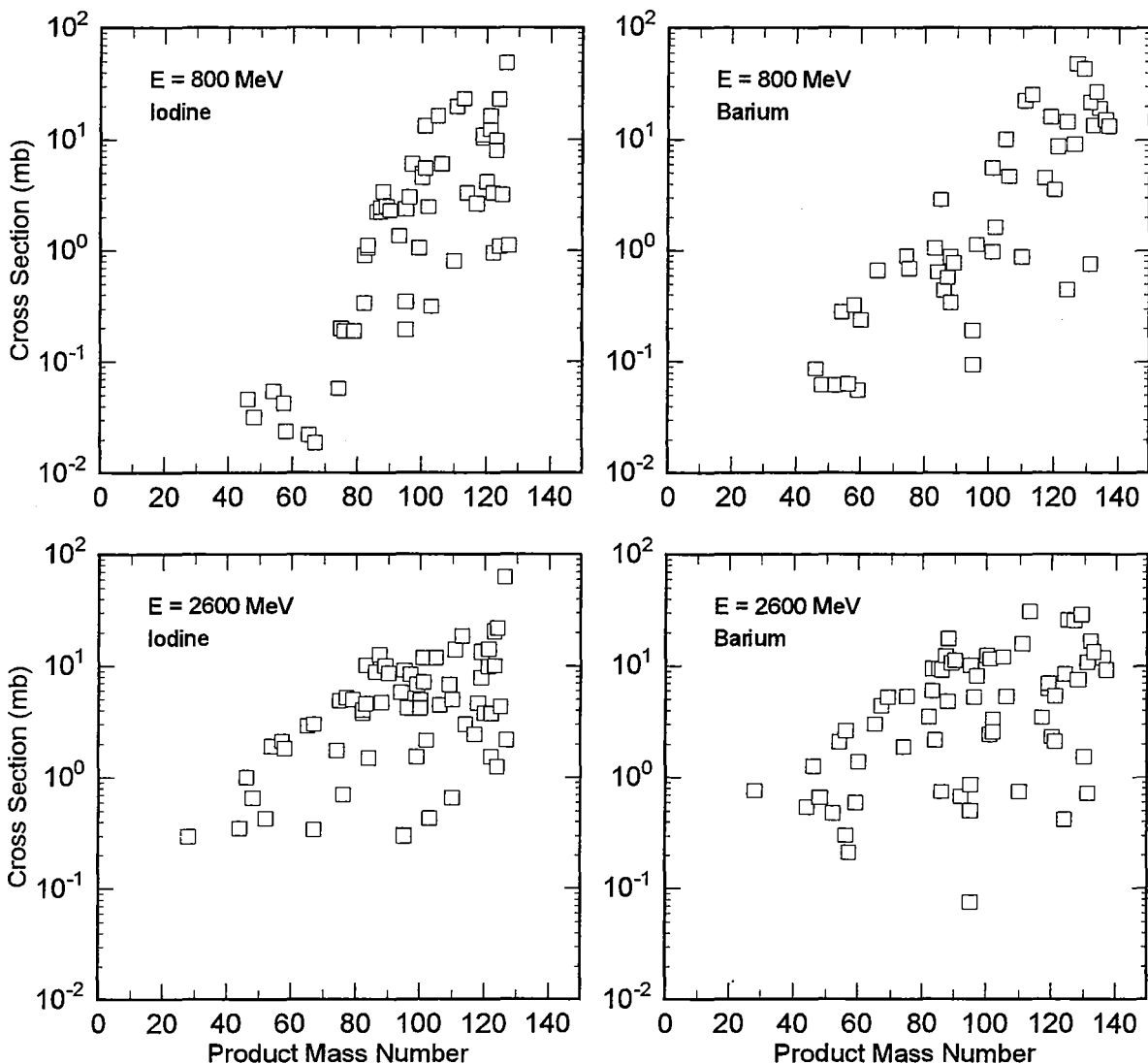


Abbildung 18: Wirkungsquerschnitte für protonen-induzierte Kernreaktionen an Iod und Barium bei 800 und 2600 MeV als Funktion der Produktmassenzahl. Wirkungsquerschnitte für Ba wurden der Arbeit von Bodemann [28] entnommen.

Die Isobarenverteilung der Produktnuklide bei einer vorgegebenen Energie erlaubt Rückschlüsse auf die beteiligten Reaktionsmechanismen. Diese Größe ist definiert als Summe aller unabhängigen Wirkungsquerschnitte für Produkte mit gleicher Massenzahl.

Da in dieser Arbeit nicht alle Wirkungsquerschnitte, sondern nur die der γ -aktiven Produktnuklide bestimmt worden sind, handelt es sich lediglich um Anteile an der Isobarenausbeute. Weil die Ladungsdispersion auf einer Isobaren durch eine gaußähnliche Verteilung mit einer Breite von 1 -2 Ordnungszahlen beschrieben wird, tragen in der Regel auch nur 1-2 unabhängige Wirkungsquerschnitte nennenswert zur Isobarenausbeute bei [31]. Deshalb darf nach Bodemann [28] die obere Einhüllende der Wirkungsquerschnitte in guter Näherung als Isobarenausbeute betrachtet werden.

Betrachtet man zunächst die Massenausbeutekurven für Iod und Barium bei der Energie von 800 MeV, so erkennt man, daß im targetnahen Bereich die maximalen Wirkungsquerschnitte bei ca. 50 mb und die minimalen Wirkungsquerschnitte bei etwa 1 mb liegen. Der Verlauf der oberen Einhüllenden zu kleineren Massenzahlen ist für beide Targetnuklide nahezu identisch und typisch für Spallationsreaktionen. Hierbei nimmt der Wirkungsquerschnitt exponentiell mit abnehmender Produktmasse ab. So werden beim Iod für Produktnuklide mit Massen unter $A < 80$ nur noch Wirkungsquerschnitte kleiner 1 gemessen, die ab einer Produktmasse $A = 74$ sogar unter 0.1 mb sinken. Bei niedrigeren Massenzahlen ($A < 60$) steigen die Wirkungsquerschnitte wieder leicht an. Dies Produkte werden hauptsächlich durch Cluster-Evaporation während der Verdampfungsphase einer Spallationsreaktion gebildet [34]. Dagegen zeigt Barium für Massenzahlen unter $A = 80$ ein etwas differenzierteres Bild. Dort ist der Abfall der Wirkungsquerschnitte nicht so steil.

Die Massenausbeutekurven für Iod und Barium bei 2600 MeV sind sehr ähnlich und besitzen keine signifikanten Unterschiede. Im Vergleich zu 800 MeV fallen die Wirkungsquerschnitte erst bei einer Massenzahl von 80 kontinuierlich ab. Im Massenzahlbereich $80 \leq A \leq 100$ liegen die Wirkungsquerschnitte der oberen Einhüllenden bei etwa 10 mb und im targetnahen Bereich ist wieder ein Anstieg zu verzeichnen. Der Übergang von Spallation zu Multifragmentation macht sich bei Energie von 2600 MeV dadurch bemerkbar, daß im Vergleich zu 800 MeV die Wirkungsquerschnitte für die targetfernen Produktnuklide wieder ansteigen.

3.2 Vergleich der experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitte mit Vorhersagen eines semiempirischen Modells

Zur theoretischen Berechnung der Wirkungsquerschnitte stehen verschiedene Modelle mit zum Teil völlig unterschiedlichen physikalischen Ansätzen zur Verfügung. Zur Zeit existiert kein Modell, daß alle Kernreaktionen im Energiebereich zwischen wenigen MeV bis zu einigen GeV beschreibt. Eine zusammenfassende Darstellung existierender Modelle kann der Arbeit von Michel et al. [16] entnommen werden.

Für Protonenenergien über 200 MeV, also im Energiebereich, in dem die Spallations- und Fragmentationsreaktionen dominieren, kann man die Wirkungsquerschnitte mit Hilfe von Monte-Carlo-Methoden berechnen. Da diese Rechnungen äußerst zeitaufwendig sind, wurde in dieser Arbeit zur theoretischen Berechnung der Wirkungsquerschnitte ein semiempirisches Modell von Silberberg und Tsao [32] verwendet, in Form der Fortran-Subroutine YIELD. Die Rechnungen wurden am Zentrum für Strahlenschutz und Radioökologie (ZRS) der Universität Hannover durchgeführt. Eine Beschreibung des Programms und der dazu benötigten Parametersätze findet man in den Arbeiten von Bodemann [28], Lüpke [15] und darin zitierten Veröffentlichungen.

Die geometrischen Mittelwerte der Verhältnisse aus berechneten und experimentellen Wirkungsquerschnitten sind in Tabelle 4 aufgelistet. Da das Programm nicht die Berechnung metastabiler Produktnuklide erlaubt, konnte der Vergleich nicht mit allen experimentellen Daten erfolgen.

Tabelle 4: Geometrische Mittelwerte der Wirkungsquerschnitts-Verhältnisse ($\sigma_{\text{calc}}/\sigma_{\text{exp}}$) bei verschiedenen Energien.

Energie [MeV]	Anzahl experimenteller Wirkungsquerschnitte	($\sigma_{\text{calc}}/\sigma_{\text{exp}}$) geometrisches Mittel
150	11	1.079 +/- 2.176
400	26	1.304 +/- 1.988
600	33	1.509 +/- 1.750
800	41	2.395 +/- 1.685
2600	47	1.140 +/- 3.871

Der Vergleich der semiempirisch bestimmten Anregungsfunktionen der Niederenergie-Produkt nuklide ^{127}Xe , ^{125}Xe , ^{122}Xe , ^{126}I , ^{124}I und ^{123}I in den Abbildungen 10 - 15 zeigt über den gesamten Energiebereich eine relativ gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Diese ist vermutlich auf die in der Literatur vorhandene experimentelle Datenbasis zurückzuführen, auf denen die Parameter der semiempirischen Formel beruhen. Bei den Mittelenergie- und insbesondere bei den Hochenergieprodukten treten dagegen größere Diskrepanzen auf, weil umgekehrt für diese Produkt nuklide bisher keine experimentellen Daten vorlagen. Man müßte nun dahingehen und die Parameter der Formeln an die hier vorgestellten experimentellen Wirkungsquerschnitte anpassen und einen erneuten Vergleich durchführen.

In den Abbildungen 19 und 20 sind übersichtshalber die Verhältnisse der theoretisch berechneten zu den experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitten aus dieser Arbeit für die Protonenenergien von 150, 400, 600, 800 und 2600 MeV in Abhängigkeit von der Produktmassenzahl dargestellt. Man erkennt, daß bei allen Energien im targetnahen Bereich für Massenzahlen > 120 die Verhältnisse zwischen 0.5 und 1.5 liegen.

Eine Ausnahme ist bei der Energie von 2600 MeV zu beobachten. Hier liegen die Wirkungsquerschnitt-Verhältnisse über den ganzen Massenzahlenbereich zwischen 0.5 und 2. Größere Abweichungen treten nur für die Produkt nuklide ^{119}Te (4.5) und ^{99}Rh (7.8) auf. Der geometrische Mittelwert (1.14) liegt daher nahe bei 1, wobei die Daten allerdings innerhalb eines Faktors von 3.8 streuen.

Dagegen beobachtet man bei 600 und insbesondere bei 800 MeV eine größere Streuung der Werte. Die geometrischen Mittelwerte liegen hier bei 1.5 und 2.4. Mit wenigen Ausnahmen werden die Ausbeuten aller Produkt nuklide überschätzt. Besonders deutlich werden die Ausbeuten für leichte Spalt- und Fragmentationsprodukte bis zu einem Faktor 66 (800 MeV) bzw. 40 (600 MeV) überschätzt.

Da die anhand der semiempirischen Formel berechneten Wirkungsquerschnitte gegenüber den experimentell ermittelten teilweise starke Abweichungen zeigen, eignen sie sich nur beschränkt zur Vorhersage von unbekannten Reaktionen bei verschiedenen Energien.

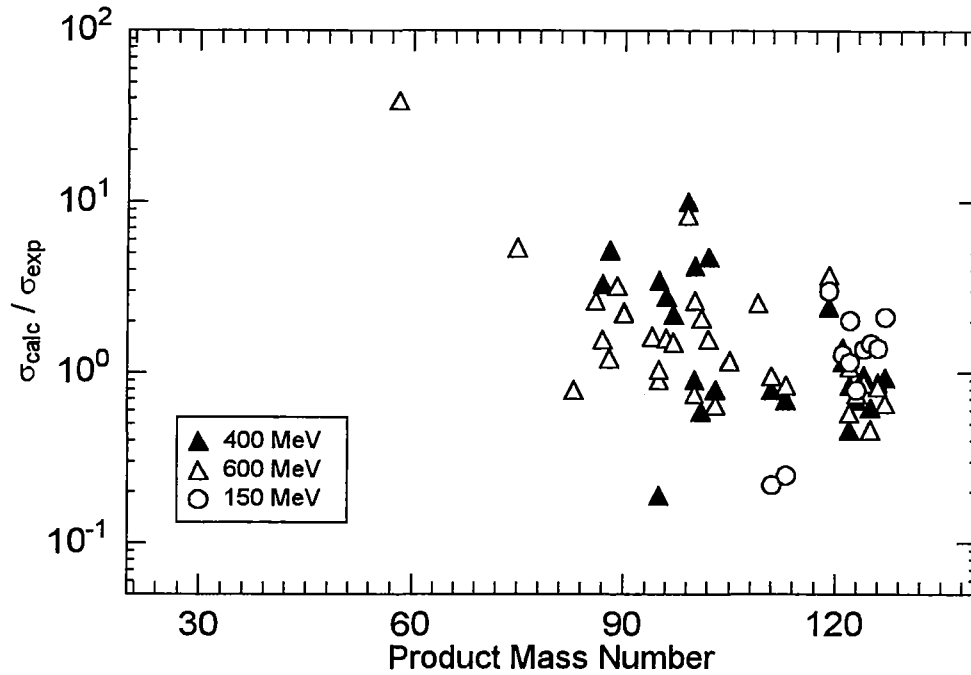


Abbildung 19: Verhältnisse der theoretisch berechneten (Silberberg und Tsao) zu den experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitten aus dieser Arbeit für die Protonenenergien von 150, 400 und 600 MeV.

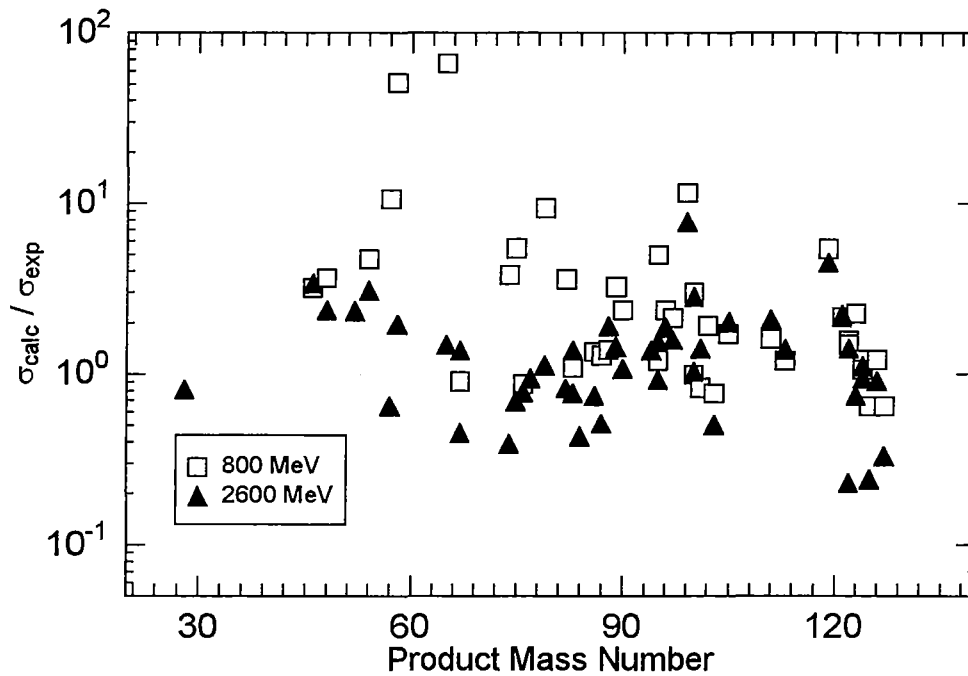


Abbildung 20: Verhältnisse der theoretisch berechneten (Silberberg und Tsao) zu den experimentell bestimmten Wirkungsquerschnitten aus dieser Arbeit für die Protonenenergien von 800 und 2600 MeV.

4. Zusammenfassung und Ausblick

Die Transmutation der langlebigen Radionuklide in kurzlebige bzw. stabile Nuklide kann durch eine Kernreaktion mit Hilfe von Elementarteilchen (Neutronen, Protonen, Photonen etc.) erfolgen. ^{129}I mit einer Halbwertszeit von 15,7 Millionen Jahren ist eines der Problemnuklide, daß sich durch Neutroneneinfang in stabiles ^{130}Xe transmutieren ließe.

In der vorliegenden Arbeit wurde alternativ zur neutronen-induzierten Transmutation von ^{129}I die Wechselwirkung mit hochenergetischen Protonen experimentell untersucht. Mit Hilfe der stacked-foil-Technik wurden im Zeitraum 1994 bis 1995 sechs Bestrahlungsexperimente am Synchrotron des Laboratoire National Saturne in Saclay, Frankreich, bei Protonenenergien von 145, 330, 400, 600, 800 und 2600 MeV durchgeführt. Da bei der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen neben ^{129}I auch inaktives ^{127}I anfällt, daß sich physikalisch ähnlich verhält, wurde letzteres in Form von NaI zur Simulation in den Bestrahlungsexperimenten eingesetzt. Ende 1996 soll schließlich auch aktives ^{129}I im Synchrophasotron des Joint Institute for Nuclear Research in Dubna, Russland bestrahlt werden.

Durch γ -spektrometrische Untersuchung der bestrahlten Proben wurden die Wirkungsquerschnitte von 261 Produktnukliden bestimmt. Durch protonen-induzierte Reaktionen des Typus (p,pxn) bis (p,41p87n) betrug der Massenunterschied zwischen Target und Produkt bis zu 99 Einheiten. Insbesondere bei dem Hochenergieexperiment von 2600 MeV wurden die Wirkungsquerschnitte für 70 protonen-induzierte Reaktionen ermittelt. Die neuen experimentellen Daten zeigen eine gute Übereinstimmung mit den wenigen Werten anderer vergleichbarer Arbeiten. Insbesondere konnten dabei die Lücken in den Datensätzen von existierenden Anregungsfunktionen einiger Niederenergieprodukte wie z.B. ^{127}Xe , ^{125}Xe , ^{123}Xe , ^{126}I , ^{124}I , ^{123}I gefüllt werden. Erstmals werden in dieser Arbeit die Anregungsfunktionen von Mittel- und Hochenergieprodukten nach Bestrahlung von Iod mit Protonen vorgestellt. Der Vergleich mit dem semiempirischen Ansatz von Silberberg und Tsao zeigt eine relativ gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten. Die Werte streuen dabei um den Faktor 2-3. In Einzelfällen erreichten die Abweichungen einen Faktor von bis zu 66.

Die Halbwertszeiten der nachgewiesenen Produkte erstreckten sich von 4,2 Stunden des ^{109}In bis zu 2,9 Jahre des ^{102}Rh . Da in dieser Arbeit nicht alle Wirkungsquerschnitte, sondern nur die der γ -aktiven Produktnuklide bestimmt worden sind, konnten langlebige β -Strahler wie z.B. das ^{99}Tc nicht erfaßt werden. Hierzu müssen die Proben noch chemisch aufgearbeitet und mit weiteren radioanalytischen Verfahren untersucht werden.

5. Literatur

- [1] Narang, V.P., Yaffe, L., Can. J. Chem. 46 (1968), S. 3171-3176.
- [2] Lagunas-Solar, M.C., Carvacho, O.F., Harris, L.J., Mathis, C.A., Appl. Radiat. Isot. 37 (1986), S. 835-842.
- [3] Ladenbauer, I.M., Winsberg, L., Phys. Rev. 119 (1960), S. 1368-1375.
- [4] Zaitseva, N.G., Knotek, O. et al., Radiokhimiya 29 (1987), S. 376-380.
- [5] Diksic, M., Yaffe, L., J. Inorg. Nucl. Chem. 39 (1977), S. 1299-1302.
- [6] Colle, R., Kishore, R., Phys. Rev. C 9 (1974), S. 2166-2170.
- [7] Ohkubo, Y., Porile, N.T., Orth, C.J., Liu, L.C., Phys. Rev. C 27 (1983), S. 1146-1161
- [8] Hegedüs, F., Peek, N.F., "Radioisotope yields and cross sections in Lanthanum, Cesium and Iodine targets bombarded with 590 MeV protons", EIR-Report 358, Wuerenlingen, Switzerland, January 1979.
- [9] Strohal, P.P. Caretto, A.A., Phys. Rev. 121 (1961), S. 1815-1822.
- [10] Adilbish, M., Chumin, V.G., Khalkin, V.A. et al., Int. J. Appl. Radiat. Isot. 31 (1980) S. 163-167.
- [11] Kuznetsova, V.N., Mekhedov, V.N., Khalkin, V.A., Soviet Phys.-JETP 34 (1958), S. 759.
- [12] Schopper, H., Landolt-Börnstein, "Production of Radionuclides at Intermediate Energies", Group I, Volume 13, Subvolume C Berlin, New York, Springer-Verlag, 1994.
- [13] Lundqvist, H., Malmberg, P., Langstrom, B., Chiengmai, S.N, Int. J. Appl. Radiat. Isot. 30 (1979), S. 39-43
- [15] Lüpke, M., "Untersuchung zur Wechselwirkung galaktischer Protonen mit Meteroiden-Dicktarget-Simulationsexperimente und Messung von Dünntarget-Wirkungsquerschnitten", Dissertation, Universität Hannover, 1993.
- [16] Michel, R., Gloris, M., Lange, H.J. et al., Nucl. Instr. and Meth. B 103 (1995), S. 183.
- [17] Reus U., Westmeier W., "Catalog of Gamma Rays from Radioactive Decay", Data Nucl. Data Tabl. 29 (1983), S. 1-406.
- [18] Sakamoto, K., Dohniwa, M., Okada, K., Int. J. Appl. Radiat. Isot. 36 (1985), S. 481.
- [19] Merz, E., "Waste partitioning and transmutation as a means towards long-term risk reduction", Report Jül-2818, September 1993.
- [20] Baetsle, L.H., "Partitioning and transmutation of actinides and fission products", atomwirtschaft 38 (1993) Nr. 4, S. 266-270.
- [21] Phlippen, P.-W., Lypsch, F., Lizana, P., Rütten, H.-J., "Gefährdungspotential radioaktiver Abfälle", atomwirtschaft 40 (1995) Nr.6, S. 384-389.

- [22] Lizana, P., Lypsch, F., Phlippen, P.-W., "Neutronical and Technical Design of an Accelerator-Driven Fluid Fuel Transmuter" in Proceedings of the International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems, GLOBAL 95, Versailles, France, 11-14 September 1995, S.1472-1479.
- [23] Lypsch, F., "Aspekte des Einsatzes von Systemen zur Transmutation radioaktiver Stoffe -Neutronik, Technik, Sicherheitsverhalten-", Dissertation RWTH Aachen, Jül-Bericht 3181, Januar 1996.
- [24] Jansen, Ch., "Protonenfenster und Flüssigmetalltarget für eine beschleunigergetriebene Transmutationsanlage", Dissertation RWTH Aachen, Jül-Bericht 3152, Dezember 1995
- [25] Modolo, G., "Untersuchungen zur Abtrennung von I-129 aus dem Filtermaterial AC 6120 im Hinblick auf eine zukünftige Transmutation", Jül-Bericht 3119, Sept. 1995.
- [26] Konings, R.J.M., et al., "Technological Aspects of Transmutation of Technetium and Iodine", in Proc. of the Intern. Conf. and Technology Exposition on Future Nuclear Systems, GLOBAL 93, Seattle, Washington, Sept. 12-17, (1993), S. 1260.
- [27] Konings, R.J.M., et al., "Irradiation tests of transmutation of the fission products technetium and iodine", in Proceedings of the International Conference on Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems, GLOBAL 95, Versailles, France, 11-14 September 1995, S.1631-1637.
- [28] Bodemann, R., "Zur Wechselwirkung der solaren kosmischen Strahlung mit extraterrestrischer Materie-Messung von Wirkungsquerschnitten und Modellrechnungen", Dissertation Universität Hannover, 1993.
- [29] Tobailem, J., de Lassus St. Genies, C.H., CEA-N-1466 (1) (1971)
- [30] Seelmann-Eggebert, W. et al., "Karlsruher Nuklidkarte", 5. Auflage, (1981), Gersbach & Sohn Verlag, München.
- [31] Sümmerer, K. et al., Phys. Rev. C42 (1990), S. 2546.
- [32] Tsao, C.H., Silberberg, R. et al. , Phys. Rev. C47 (1993), S. 1257.
- [33] Storm, E., Israel, H.I., Nucl. Data Tabl. A7 (1970), S. 565.
- [34] Serber, R., Phys. Rev. 72 (1947), S. 1114.

Anhang :

A: Spektroskopische Interferenzen

Die beiden interferierenden Nuklide werden durch die Indizes 1 und 2 gekennzeichnet. Die nachfolgenden Betrachtungen basieren auf der Annahme, daß die Dauer der Messung t_M klein im Vergleich mit den Halbwertzeiten der Nuklide ist, also $\lambda \cdot t_M \ll 1$.

Annahme: Die Aktivität des Nuklids 2 ist bekannt.

Die Zahl der Ereignisse NP im Nettopeak einer überlagerten γ -Linie ergibt sich gemäß Gleichung (13).

$$NP = \varepsilon \cdot I_{\gamma_1} \cdot A_1 \cdot e^{-\lambda_1 t_w} \cdot t_M + \varepsilon \cdot I_{\gamma_2} \cdot A_2 \cdot e^{-\lambda_2 t_w} \cdot t_M \quad (13)$$

Dabei ist ε das Ansprechvermögen des Detektors bei der betrachteten γ -Energie und t_M die Dauer der Messung. λ_j stellt die Zerfallskonstante, A_j die Aktivität des Nuklids j zum Bestrahlungsende und I_{γ_j} das Verzweigungsverhältnis des betrachteten γ -Übergangs dar ($j=1,2$). t_w ist die Zeit zwischen dem Ende der Bestrahlung und dem Beginn der γ -spektrometrischen Messung.

Wird die Überlagerung durch das Nuklid 2 nicht berücksichtigt, wird eine falsche Aktivität A_1^* nach Gleichung (14) berechnet.

$$NP = \varepsilon \cdot I_{\gamma_1} \cdot A_1^* \cdot e^{-\lambda_1 t_w} \cdot t_M \quad (14)$$

Ist A_2 bekannt, so erhält man durch Gleichsetzen von Gl. (13) und Gl. (14) und Freistellen von A_1 Gleichung (15). Diese Formel erlaubt es, bei Kenntnis von A_2 aus dem falschen Wert A_1^* die richtige Aktivität A_1 zu ermitteln.

$$A_1 = A_1^* - \chi \cdot A_2 \cdot e^{(\lambda_1 - \lambda_2) t_w} \quad (15)$$

$$\text{mit } \chi = \frac{I_{\gamma_2}}{I_{\gamma_1}}$$

B: In dieser Arbeit bestimmte experimentelle Wirkungsquerschnitte

Tabelle 5: Experimentell bestimmte Wirkungsquerschnitte für die protonen-induzierte Radionuklidproduktion aus ^{127}I mit Energien zwischen 145 und 2600 MeV.

Energie	145 MeV	330 MeV	400 MeV	600 MeV	800 MeV	2600 MeV
Produkt	Wirkungsquerschnitt [mb]					
^{28}Mg						0.30 ± 0.05
$^{44\text{m}}\text{Sc}$						0.35 ± 0.06
^{46}Sc					0.041 ± 0.005	1.00 ± 0.12
^{48}V					0.032 ± 0.007	0.66 ± 0.06
^{52}Mn						0.43 ± 0.05
^{54}Mn					0.055 ± 0.007	1.90 ± 0.20
^{57}Co					0.063 ± 0.009	3.09 ± 0.31
^{58}Co				0.011 ± 0.005	0.024 ± 0.003	1.84 ± 0.17
^{65}Zn					0.022 ± 0.003	2.90 ± 0.37
^{67}Cu					0.021 ± 0.004	0.38 ± 0.06
^{67}Ga						3.02 ± 0.31
^{74}As					0.058 ± 0.009	1.73 ± 0.17
^{75}Se				0.091 ± 0.013	0.26 ± 0.02	6.46 ± 0.58
^{76}Kr					0.19 ± 0.04	0.70 ± 0.08
^{77}Br						5.21 ± 0.46
^{79}Kr					0.19 ± 0.06	5.00 ± 0.46
^{82}Sr					0.34 ± 0.05	3.76 ± 0.41
$^{82\text{m}}\text{Rb}$					0.94 ± 0.23	4.00 ± 0.43
^{83}Rb				0.27 ± 0.03	1.06 ± 0.11	10.02 ± 0.90
^{83}Sr						4.56 ± 0.52
^{84}Rb						1.49 ± 0.22
^{86}Y				0.44 ± 0.05	2.23 ± 0.20	8.68 ± 1.06
$^{87\text{m}}\text{Y}$		0.073 ± 0.014	0.15 ± 0.15	0.77 ± 0.07	2.24 ± 0.24	12.44 ± 1.35
^{87}Y		0.037 ± 0.008	0.062 ± 0.007	0.81 ± 0.10	2.45 ± 0.25	12.41 ± 1.18
^{88}Y		0.018 ± 0.003	0.064 ± 0.005	1.60 ± 0.18	3.42 ± 0.39	4.66 ± 0.91

Tabelle 5: Experimentell bestimmte Wirkungsquerschnitte für die protonen-induzierte Radionuklidproduktion aus ^{127}I mit Energien zwischen 145 und 2600 MeV. (Fortsetzung)

Energie	145 MeV	330 MeV	400 MeV	600 MeV	800 MeV	2600 MeV
Produkt	Wirkungsquerschnitt [mb]					
^{89}Zr				1.06 ± 0.25	2.51 ± 0.45	9.83 ± 0.90
^{90}Nb		0.085 ± 0.015	0.26 ± 0.05	1.39 ± 0.13	3.01 ± 0.28	10.87 ± 0.99
$^{93\text{m}}\text{Mo}$		0.26 ± 0.05		0.82 ± 0.14	1.36 ± 0.29	
^{94}Tc		0.27 ± 0.05		1.90 ± 0.33		5.74 ± 0.60
^{95}Tc			0.43 ± 0.08	6.61 ± 0.77	2.41 ± 0.46	9.07 ± 1.64
$^{95\text{m}}\text{Tc}$			0.039 ± 0.007	0.26 ± 0.03	0.35 ± 0.04	0.31 ± 0.04
^{95}Nb		0.019 ± 0.004	0.15 ± 0.02	0.11 ± 0.01	0.19 ± 0.02	0.29 ± 0.06
^{96}Tc		0.088 ± 0.015	0.35 ± 0.05	2.33 ± 0.46	3.06 ± 0.31	4.17 ± 0.49
^{97}Ru		0.34 ± 0.09	0.88 ± 0.12	4.60 ± 0.50	6.00 ± 0.94	8.39 ± 0.75
^{99}Rh		0.25 ± 0.06	0.23 ± 0.02	0.89 ± 0.08	1.06 ± 0.10	1.53 ± 0.25
$^{99\text{m}}\text{Rh}$		0.66 ± 0.11		3.11 ± 0.28		6.79 ± 1.01
^{100}Rh		0.43 ± 0.05	0.97 ± 0.10	4.76 ± 0.68	4.91 ± 0.50	4.94 ± 0.53
^{100}Pd		0.31 ± 0.03	1.05 ± 0.11	3.91 ± 0.37	4.55 ± 0.44	4.17 ± 0.38
^{101}Pd		0.91 ± 0.16	4.44 ± 0.77	3.71 ± 0.35	13.26 ± 1.21	7.21 ± 0.86
$^{101\text{m}}\text{Rh}$		1.18 ± 0.10	3.57 ± 0.29	12.54 ± 1.16	5.55 ± 0.68	11.74 ± 1.06
^{102}Rh		0.29 ± 0.03	0.74 ± 0.06	2.26 ± 0.20	2.49 ± 0.22	
^{103}Ru		0.042 ± 0.004	0.094 ± 0.010	0.29 ± 0.03	0.32 ± 0.03	0.43 ± 0.07
^{105}Ag		4.38 ± 0.40	9.36 ± 0.81	19.31 ± 2.01	16.38 ± 1.79	11.84 ± 1.06
$^{106\text{m}}\text{Ag}$		2.13 ± 0.19	4.24 ± 0.37	7.29 ± 1.01	6.05 ± 0.61	4.44 ± 0.40
^{109}In		11.21 ± 0.94		10.85 ± 1.12		7.51 ± 1.02
$^{110\text{b}}\text{In}$		9.70 ± 1.07		20.09 ± 2.08		5.00 ± 0.60
$^{110\text{m}}\text{Ag}$		0.36 ± 0.03	0.57 ± 0.05	0.93 ± 0.08	0.81 ± 0.07	0.66 ± 0.08
^{111}In	13.93 ± 1.92	24.01 ± 1.98	32.40 ± 3.56	36.96 ± 4.30	23.07 ± 2.84	16.39 ± 1.71
^{113}Sn	17.88 ± 2.32	27.70 ± 2.62	33.73 ± 2.86	34.43 ± 3.43	23.20 ± 2.47	18.43 ± 2.61
$^{114\text{m}}\text{In}$	2.62 ± 1.01	3.80 ± 0.32	4.83 ± 0.43	5.32 ± 0.53	3.73 ± 0.38	3.33 ± 0.36
$^{117\text{m}}\text{Sn}$	3.42 ± 0.56	6.02 ± 0.68	7.00 ± 0.78	5.14 ± 0.68	3.21 ± 0.45	2.72 ± 0.47

Tabelle 5: Experimentell bestimmte Wirkungsquerschnitte für die protonen-induzierte Radionuklidproduktion aus ^{127}I mit Energien zwischen 145 und 2600 MeV.
(Fortsetzung)

Energie	145 MeV	330 MeV	400 MeV	600 MeV	800 MeV	2600 MeV
Produkt	Wirkungsquerschnitt [mb]					
$^{118\text{m}}\text{Sb}$		13.96 ± 2.37		8.90 ± 1.18		4.62 ± 0.45
$^{119\text{m}}\text{Te}$	19.76 ± 2.62	21.82 ± 1.99	22.81 ± 3.17	18.08 ± 2.08	10.47 ± 1.04	7.85 ± 0.70
^{119}Te	32.99 ± 6.51	32.83 ± 4.69	31.87 ± 3.36	18.15 ± 1.84	10.95 ± 1.91	13.38 ± 2.41
$^{120\text{m}}\text{Sb}$	4.50 ± 0.60	6.06 ± 0.49	7.03 ± 0.56	6.38 ± 0.71	4.17 ± 0.42	3.78 ± 0.36
$^{121\text{m}}\text{Te}$	18.41 ± 2.38	20.21 ± 1.67	21.75 ± 1.78	19.13 ± 1.75	12.43 ± 1.30	9.87 ± 0.89
^{121}Te	49.72 ± 6.84	45.59 ± 4.48	40.05 ± 4.74	27.81 ± 2.87	16.24 ± 1.71	14.12 ± 1.93
^{122}Sb	2.83 ± 0.40	3.93 ± 0.38	6.17 ± 0.85	4.84 ± 0.44	3.31 ± 0.35	3.72 ± 0.33
^{122}Xe	6.05 ± 0.83	7.83 ± 1.38	7.57 ± 0.77	3.51 ± 0.51	0.94 ± 0.15	1.54 ± 0.29
$^{123\text{m}}\text{Te}$	16.22 ± 2.15	17.34 ± 1.37	18.48 ± 1.46	17.71 ± 1.78	12.11 ± 1.50	12.10 ± 1.43
^{123}I	71.67 ± 11.74	61.83 ± 5.87	48.18 ± 4.51	34.27 ± 4.75	9.73 ± 1.02	24.58 ± 5.61
^{124}I	40.85 ± 6.69	45.52 ± 5.87	43.83 ± 4.14	37.09 ± 3.70	22.86 ± 3.25	21.83 ± 2.94
^{124}Sb		2.09 ± 0.17	1.18 ± 0.14	1.34 ± 0.14	1.09 ± 0.12	1.24 ± 0.12
^{125}Xe	14.01 ± 1.83	11.68 ± 1.09	9.37 ± 0.88	7.43 ± 0.79	3.66 ± 0.38	4.87 ± 0.51
^{126}I	60.76 ± 7.90	66.92 ± 5.86	73.53 ± 6.11	74.61 ± 8.25	48.90 ± 4.78	62.34 ± 6.60
^{127}Xe	2.98 ± 0.82	1.97 ± 0.17	1.91 ± 0.17	1.58 ± 0.22	1.11 ± 0.11	2.16 ± 0.24

Jül-3257
August 1996
ISSN 0944-2952