

Kernreaktionen

Institut für Kernchemie
Universität Mainz

Was sind Kernreaktionen?

Radioaktiver Zerfall → spontane Kernumwandlung



Kernreaktion → induzierte Kernumwandlung



Intermediär wird ein Compound-Kern C^* gebildet (Lebensdauer $< 10^{-13}\text{s}$)

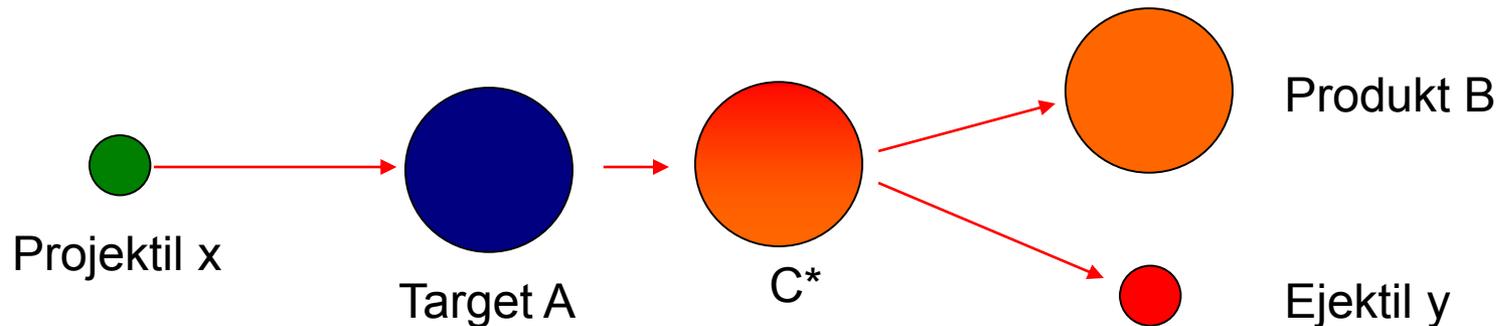
Erste künstliche Kernreaktion: $^{14}\text{N}(\alpha,p)^{17}\text{O}$ (Rutherford 1919)

Streuung im Gegensatz zur eigentlichen Kernreaktion:

elastisch (ohne Energieübertragung): $A(a,a)A$

inelastisch (mit Energieübertragung): $A(a,a')A^*$

Energetik von Kernreaktionen



Eine Kernreaktion ist analog zur chemischen Reaktion mit einem Umsatz von Energie (**Reaktionsenergie Q**) verbunden.



Ein positiver Q-Wert bedeutet Energiefreisetzung (exoergisch), ein negativer Q-Wert Energieabsorption (endoergisch).

Der **Q-Wert** ergibt sich aus den **Massendifferenzen** der Reaktionspartner.

$$Q = (M_A + M_x - (M_B + M_y)) c^2$$

Rückstoß und Schwellenergie

Bei ruhendem Target muss die Reaktionsenergie aus der kinetischen Energie des Projektils stammen. Ein Teil der kinetischen Energie wird jedoch gemäß dem Impulserhaltungssatz als Rückstoßenergie auf den Compoundkern (und damit auf die Reaktionsprodukte) übertragen:

$$M_x \vec{v}_x = M_C \vec{v}_C = (M_x + M_A) \vec{v}_C$$
$$E_R = \frac{1}{2} (M_x + M_A) \vec{v}_C^2; E_x = \frac{1}{2} M_x \vec{v}_x^2$$
$$\Rightarrow E_R = \frac{M_x}{M_x + M_A} E_x$$

Soll ein Projektil eine Kernreaktion auslösen, muss es also mindestens eine **Schwellenergie** aufweisen:

$$E_{x(S)} = -Q \left(1 + \frac{M_x}{M_A} \right)$$

Coulomb- und Zentrifugalbarriere

Bei Kernreaktionen mit geladenen Teilchen muss zusätzlich die **Coulombbarriere** zwischen Projektil und Kern überwunden werden. Über die folgende Gleichung kann die Höhe der Coulombbarriere näherungsweise abgeschätzt werden:

$$V_C = \frac{1}{4\pi\epsilon_0 r} Z_A Z_x e^2 \approx \frac{Z_A Z_x}{A_A^{1/3} + A_x^{1/3}} [\text{MeV}]$$

Erfolgt der Zusammenstoß nicht zentral, muss der Bahndrehimpuls ebenfalls berücksichtigt werden. Es tritt zusätzlich noch eine **Zentrifugalschwelle** auf, die zur Coulombbarriere addiert werden muss.

Auf Grund des **Tunneleffekts** können auch Kernreaktionen mit Teilchen stattfinden, deren Energie unterhalb der Fusionsbarriere liegt.

Der Wirkungsquerschnitt

Der **Wirkungsquerschnitt** σ ist ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, dass eine Kernreaktion eintritt.

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \phi_x \cdot N_A$$

dN_B / dt : Zahl der gebildeten Produktatome B pro Zeiteinheit

ϕ_x : Flussdichte der Projektilteilchen [$1/s \cdot cm^2$]

N_A : Zahl der Targetatome

Einheit von σ : 1 barn = 10^{-24} cm^2

Typischer geometrischer Querschnitt eines Atomkerns $\approx 10^{-24} \text{ cm}^2$

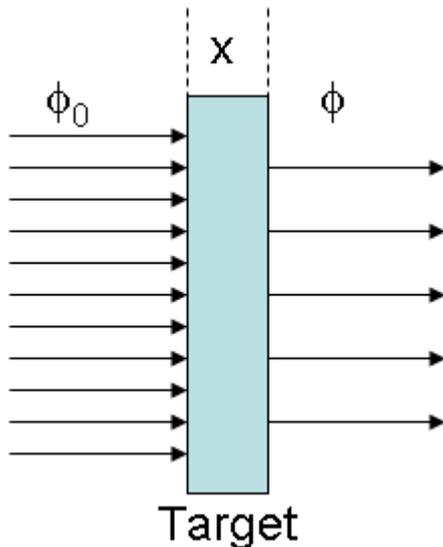
→ Bei bekannter Flussdichte kann die Ausbeute von Kernreaktionen vorausberechnet werden.

Totaler und partieller Wirkungsquerschnitt

Der partielle Wirkungsquerschnitt bezieht sich auf eine bestimmte Reaktion von x mit einem Nuklid A , z.B. (p,n) ; $(p, 2n)$ und (p,p') . Die Summe aller partiellen Wirkungsquerschnitte ergibt den totalen Wirkungsquerschnitt.

$$\sigma_t = \sum_i \sigma_i$$

Die Abnahme der Flussdichte beim Durchgang durch ein Target der Dicke x ist ein Maß für σ_t (N_A ist hier als Teilchenzahl pro Volumeneinheit definiert).



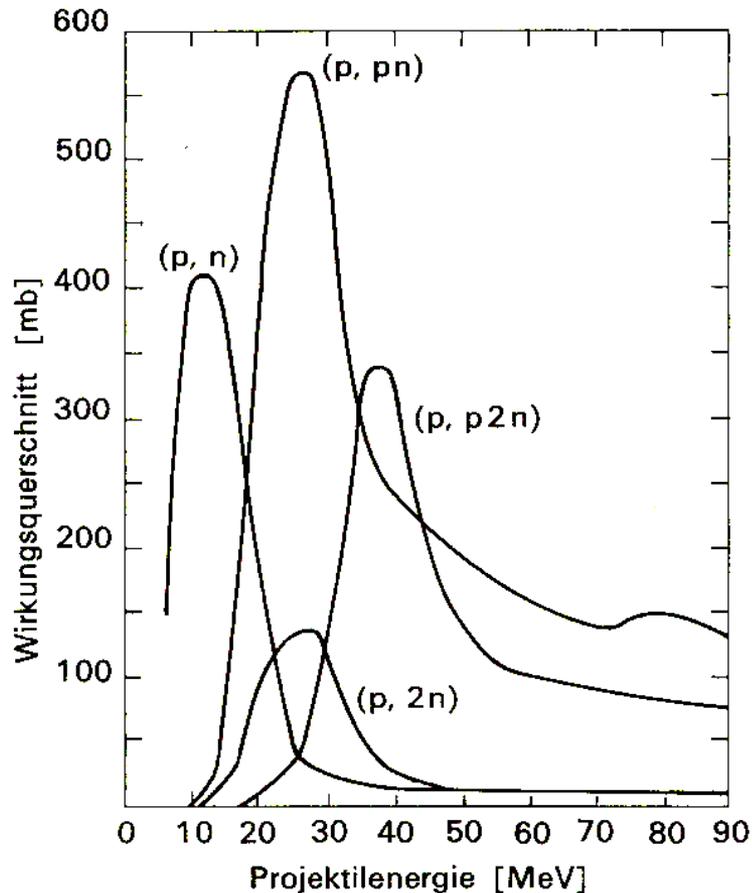
$$-d\phi = \sigma \phi N_A dx$$

$$\Rightarrow \frac{d\phi}{dx} = -\sigma \phi N_A \Rightarrow \phi(x) = \phi_0 e^{-\sigma x N_A}$$

Bei „dünnen“ Targets kann die Abschwächung vernachlässigt werden, so dass die mit einer mittleren Flussdichte gerechnet werden kann.

Anregungsfunktionen

Die Abhängigkeit des Wirkungsquerschnitts von der Energie nennt man **Anregungsfunktion**.



Anregungsfunktionen für
verschiedene Reaktionen von
 ^{63}Cu mit Protonen.

Neutroneneinfangquerschnitt

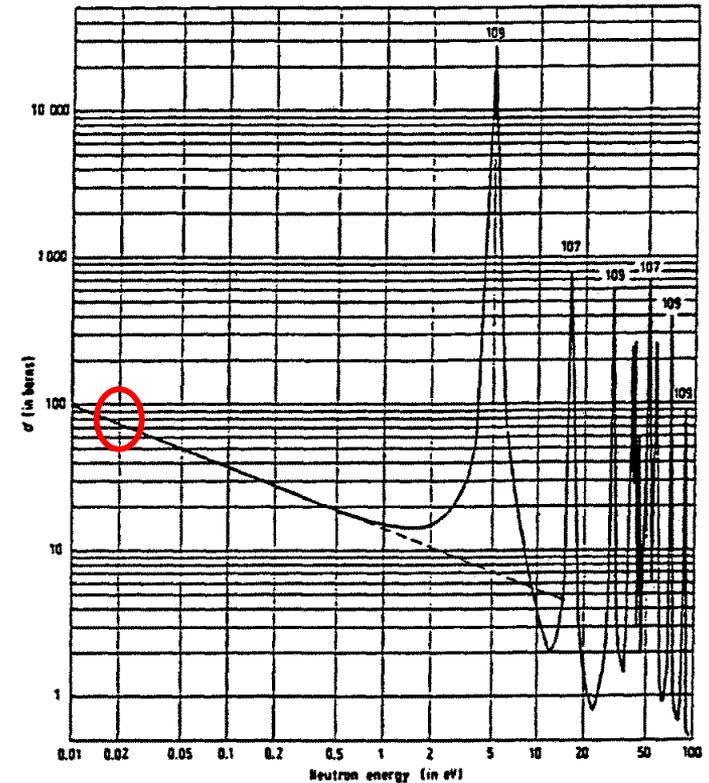
Je schneller (energiereicher) die Neutronen sind, desto geringer ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit im Kern:

$$\sigma \propto \frac{1}{v} \propto \frac{1}{\sqrt{E}}$$

Bei höheren Energien ($>1\text{eV}$) treten zusätzlich Maxima auf (Resonanzen). Hier entspricht E_{kin} der Neutronen zusammen mit der Bindungsenergie E_B gerade einem angeregten Kernniveau:

$$E^* = E_{\text{kin}} + E_B$$

Neutroneneinfangquerschnitte sind oft wesentlich größer als die geometrischen Kernquerschnitte.



Neutroneneinfangquerschnitt von Ag als Funktion der Energie.

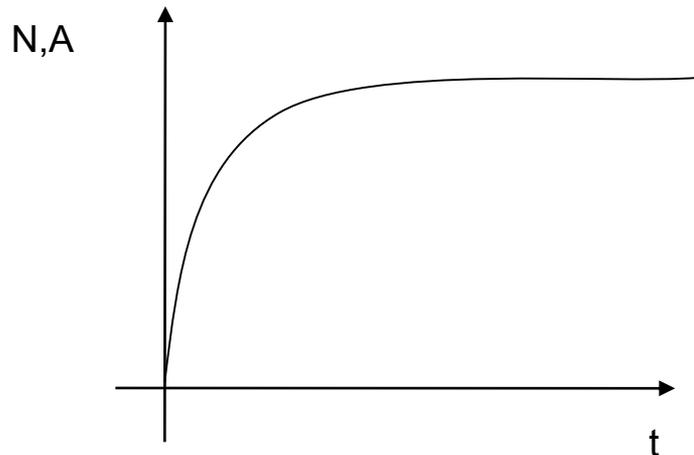
Die Aktivierungsgleichung

Bildungsrate des Nuklids B

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \phi_x \cdot N_A$$

Nach Integration

$$N_B(t) = \frac{\sigma \cdot \phi_x \cdot N_A}{\lambda} \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$



Nettobildungsrate von B

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \phi_x \cdot N_A - \lambda \cdot N_B$$

Aktivierungsgleichung

$$A_B(t) = \sigma \cdot \phi_x \cdot N_A \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

Wenn die Bestrahlungsdauer eine **Halbwertszeit des gebildeten Nuklids** beträgt, wird die **Hälfte der maximal erreichbaren Aktivität (Sättigungsaktivität)** erhalten. Nach ca. 10 Halbwertszeiten wird die Sättigungsaktivität erreicht.

$$A_B(t) = \sigma \cdot \phi_x \cdot N_A$$



$$A_B(t) = \sigma \cdot \phi_x \cdot N_A \cdot (1 - e^{-\lambda t})$$

Prinzip: Die durch die Bestrahlung erzeugte Aktivität ist proportional zur Atomzahl (Masse) des gesuchten Isotops. Die Aktivitätsmessung erfolgt in der Regel mittels γ -Spektrometrie.

Vorteile der NAA:

- zerstörungsfrei
- Alle Targetatome tragen zum Nachweis bei (keine Störung durch Inhomogenitäten)
- kleine Nachweisgrenzen (z.B. für Ag 10^{-14} g/g also 0,01 ppt)

Je höher der Fluss ϕ , desto besser ist die Nachweisgrenze.

Da ϕ im Reaktor Schwankungen unterliegt (Fremdexperimente, Neutronendepression in der Probe), wird die NAA normalerweise als Relativmethode (Mitbestrahlung von Standards) durchgeführt.



Für Bestrahlungszeiten $t \gg T_{1/2}$ wird die Sättigungsaktivität erreicht, allerdings nimmt auch die Begleitaktivität zu.

Kurzlebige Aktivierungsprodukte: kurz aktivieren, dann messen → Verminderung unnötiger Begleitaktivität. Eine Verbesserung der Nachweisgrenze kann durch zyklische Bestrahlung und Aufaddieren aller Spektren erreicht werden.

Langlebige Aktivierungsprodukte: lang aktivieren, kurzlebige Begleitaktivität zerfallen lassen (Abklingzeit), dann messen → Untergrundreduktion

⇒ durch Variation von Bestrahlungs-, Abkling- und Messzeiten lassen sich viele Elemente aus der gleichen Probe bestimmen

Häufige Begleitaktivitäten: ^{24}Na ($T_{1/2}=15$ h); ^{38}Cl ($T_{1/2}=37$ min)
C, N, O, H, Si sind schwer aktivierbar bzw. bilden kurzlebige Aktivierungsprodukte und stören daher in der Regel nicht.

INAA Instrumentelle Neutronenaktivierungsanalyse

Bestrahlung, evt. Abklingzeit, Messung

→ 100% chem. Ausbeute, Multielementmethode

RNAA Radiochemische Neutronenaktivierungsanalyse

Chemische Abtrennung vor oder nach der Bestrahlung

→ Minimierung von Begleitaktivität, keine Abklingzeit (für kurzlebige Nuklide geeignet), sehr empfindlich. Bestimmung der chemischen Ausbeute durch Tracerzusatz

DNAA Delayed Neutron Activation Analysis

β -verzögerte Neutronen als Maß für spaltbare Isotope (^{235}U , ^{239}Pu).

Bestrahlung, Messung mit Neutronenzählrohren, z.B. über

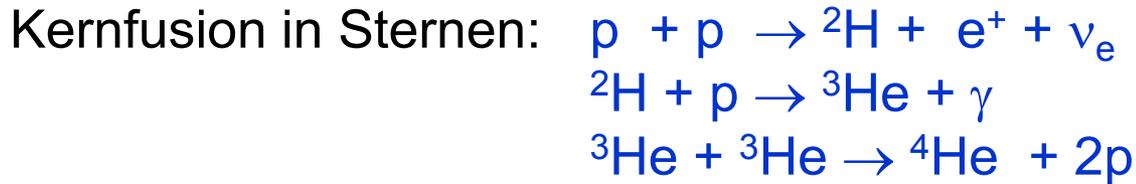


→ unempfindlich gegen Begleitaktivitäten, Messung erfolgt im Gemisch mit Spaltprodukten

Neutronenquellen

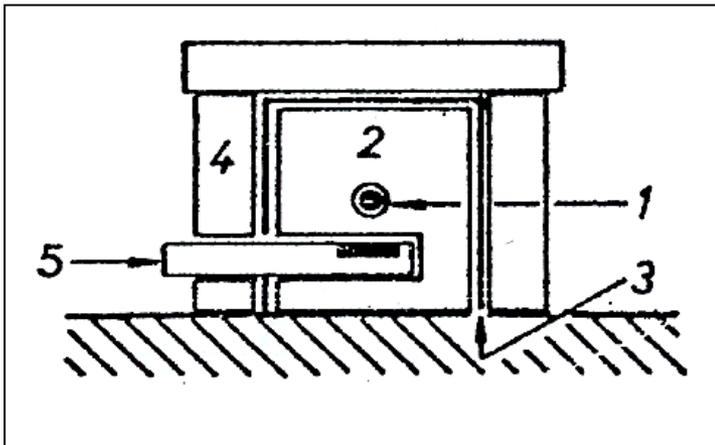
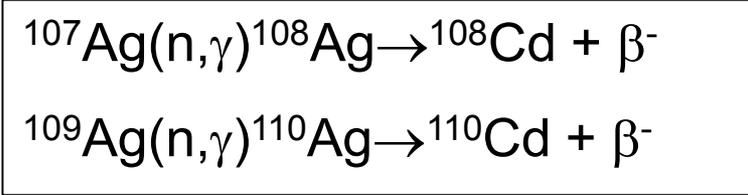
| Neutronenquelle | Reaktionen | Neutronenfluss [cm ⁻² s ⁻¹] | Neutronen- energie |
|-----------------------------|--|---|--|
| Forschungs- reaktor | $^{235}\text{U}(n,f)\dots$ | Triga: $4 \cdot 10^{12}$ (Puls: 10^{15}) FRM-II: $8 \cdot 10^{14}$ | bis 10MeV, thermisch nach Moderation |
| ^{252}Cf | $^{252}\text{Cf}(sf)$ | $10^4 - 10^7$ | im Mittel 2 MeV |
| $^{241}\text{Am}/\text{Li}$ | $^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} + \alpha$ $^7\text{Li}(\alpha,n)^{10}\text{B}$ | $10^4 - 10^5$ | im Mittel 0,5 MeV |
| $^{226}\text{Ra}/\text{Be}$ | $^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{222}\text{Rn} + \alpha$ $^9\text{Be}(\alpha,n)^{12}\text{C}$ | $10^4 - 10^5$ | im Mittel 5 MeV |
| Neutronen- generator | $t(d,n)\alpha$ | $10^8 - 10^{10}$ | 14 MeV |

Beispiele für Kernreaktionen



V1: Neutronenaktivierung von Silber

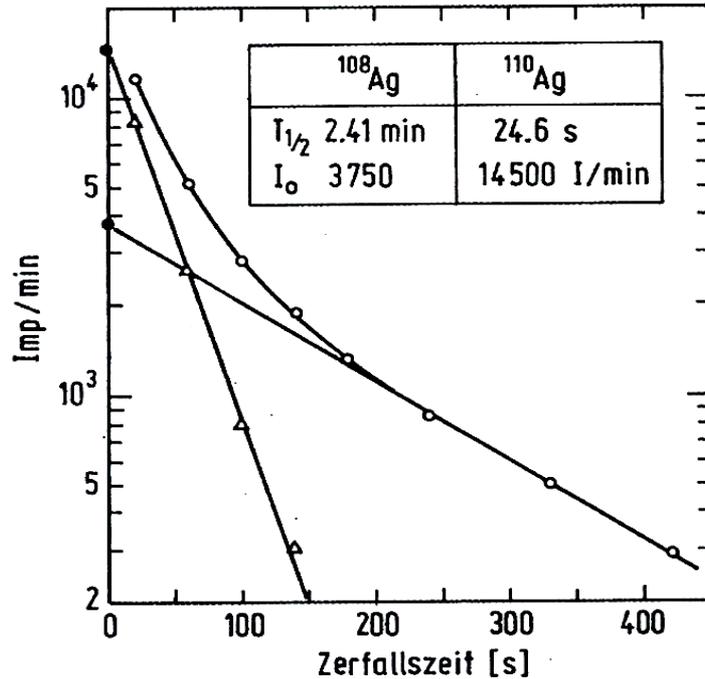
| ^{107}Ag 51,8% | ^{108}Ag | ^{109}Ag 48,2% | ^{110}Ag |
|--------------------------|----------------------------|--------------------------|---|
| 44,3s β, γ | 418y β, γ | 39,6s β, γ | 250d β, γ |
| σ 0,33 +37,6 | 2,37m β, ϵ | σ 4,7 +86,3 | 24,6s β, ϵ σ 82 |



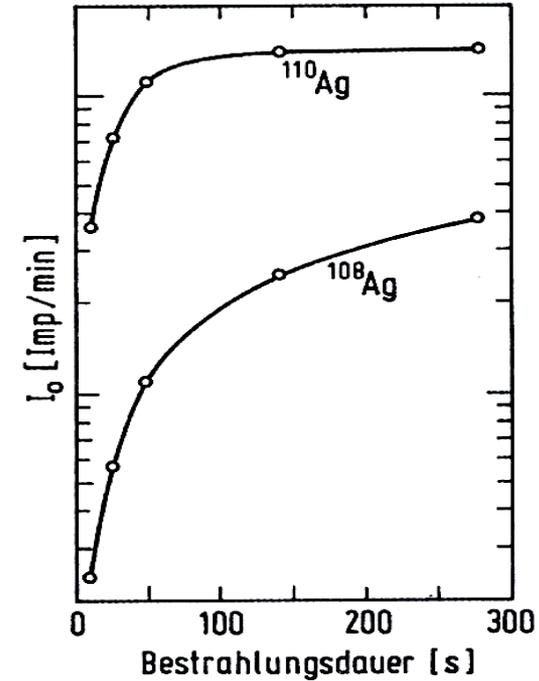
Neutronenquelle:

- 1 Am/Be-Quelle
- 2 Borcarbidgehäuse zur Abschirmung von n_{th}
- 4 Bleigehäuse zur Abschirmung der γ -Strahlung
- 5 Schieber zum Einführen von Proben

V1: Neutronenaktivierung von Silber



Zerlegung der komplexen Zerfallskurve von ^{108}Ag und ^{110}Ag



Bildungskurven von ^{108}Ag und ^{110}Ag

- Aktivierung bei unterschiedlichen Bestrahlungsdauern und Messung im GMZ
- grafische (rechnerische) Zerlegung der komplexen Zerfallskurven
- I_0 -Werte gegen Bestrahlungsdauer auftragen und aus der Sättigungsaktivität direkt das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte errechnen (über Aktivierungsgleichung, Isotopenverhältnis ca. 50:50)

V2: Absorption von Neutronen

Versuch: Ermittlung der Neutronentransmission von Cd und Pb

Bestrahlung von Ag (Probe muss abgeklungen sein)

- ohne Hülle
- in einer Cd-Hülle
- in einer Pb-Hülle

und Messung unter dem GMZ

Die Transmission T gibt die Durchlässigkeit des Absorbers für Neutronen an:

$$T = \frac{I(\text{Absorber})}{I(\text{Luft})}$$

Bei bekannter Dicke des x des Cd-Absorbers kann über

$$\phi(x) = \phi_0 e^{-\sigma x N_A}$$

der Neutroneneinfangquerschnitt für Cd abgeschätzt werden.



V3: Aktivierungsanalyse zur Cu-Bestimmung

| | | | |
|----------------------------|-------------------------|----------------------------|--------------------------|
| ^{63}Cu 69,17% | ^{64}Cu 13h | ^{65}Cu 30,83% | ^{66}Cu 5,1m |
|----------------------------|-------------------------|----------------------------|--------------------------|

Kupfer-Isotope

Bestrahlung: 1h im Karussell, $\phi = 10^{12}\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$

Abklingzeit 1h \rightarrow Zerfall der Begleitaktivität ^{28}Al ($T_{1/2}=2,25$ min)

Kernreaktionen: $^{63}\text{Cu}(n,\gamma)^{64}\text{Cu}$
 $^{65}\text{Cu}(n,\gamma)^{66}\text{Cu} \rightarrow$ zu kurze Halbwertszeit

Zerfallsreaktionen: $^{64}\text{Cu} \rightarrow ^{64}\text{Ni}$ (EC, β^+) H=19%
 $^{64}\text{Cu} \rightarrow ^{64}\text{Zn}$ (β^-) no Gamma

\rightarrow Messung der 511 keV-Vernichtungsstrahlung

Chemische Trennung: HCl-Aufschluss, Reduktion mit Sulfit, Fällung als $\text{Cu}(\text{SCN}) \rightarrow$ Durchführung mit Probe und Standard

Messung am NaI-Detektor und Berechnung des Cu-Massenanteils

