

Fakultät für Physik der
Technischen Universität München
Lehrstuhl E12

Beschleunigermassenspektrometrie mit Supernova-erzeugten Aktiniden

Christian Wallner

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik
der Technischen Universität München
zur Erlangung des akademischen Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)
genehmigten Dissertation.

Vorsitzender : Univ.-Prof. Dr. A.J. Buras
Prüfer der Dissertation : 1. Univ.-Prof. Dr. H.-J. Körner
2. Univ.-Prof. Dr. F. von Feilitzsch

Die Dissertation wurde am 29.6.2000 bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 28.9.2000 angenommen.

Zusammenfassung

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde am Beschleunigerlaboratorium der TU und der LMU München eine höchstempfindliche Nachweismethode zur Messung von langlebigen Aktiniden mittels Beschleunigermassenspektrometrie (AMS) entwickelt. Die Motivation für diese Entwicklung besteht hauptsächlich in der Messung von Supernova-produzierten ^{244}Pu -, ^{247}Cm - und ^{248}Cm -Atomen in Tiefseemangankonkretionen.

Folgende Verfahren und Komponenten wurden im Rahmen der Arbeit für die AMS mit Aktiniden entwickelt:

In Bezug auf die Suche nach Supernova-erzeugtem ^{244}Pu wurde ein Verfahren zur chemischen Extraktion von Plutonium aus Mangankonkretionen für Matrixmengen der Größenordnung 1 kg entwickelt, wobei chemische Ausbeuten bis zu 80% erzielt werden konnten.

Eine spezielle Form von Targethaltern wurde entwickelt, welche die Verwendung sehr geringer Probenmengen erlauben und gegenüber herkömmlichen Targethaltern eine etwa dreifach höhere Ausbeute an negativen Molekülonen in einer Cs-Sputterionenquelle liefern.

Für den Nachweis von Aktiniden wurde eine Frischgitter-Ionisationskammer entwickelt, bestehend aus einer symmetrisch zweigeteilten Anode zur Messung zweier ΔE -Signale und eines Oberflächensperrschichtzählers zur Messung der Restenergie, welcher zusätzlich in Kombination mit einem Channelplatedetektor als Stop-Detektor für eine Flugzeitmessung dient.

In Bezug auf die Unterdrückung von Untergrund und das Erreichen möglichst hoher Transmissionen wurde für die Messung der Aktiniden mittels AMS ein Ladungszustand von +11 bei einer Energie von etwa 150 MeV als optimal ermittelt.

Erstmals wurde eine Nachweisgrenze von $6 \cdot 10^3$ Atomen für Plutonium und $2.4 \cdot 10^3$ Atomen für Curium erreicht. Für alle längerlebigen Plutonium- und

Curiumisotope ($T_{1/2} > 1 \text{ a}$) sind dies die weltweit niedrigsten Nachweisgrenzen im Vergleich zu anderen Nachweismethoden.

Für eine Bestimmung der Effizienz des Einbaues von Plutonium in Mangankonkretionen wurde erstmals Plutonium aus den Kernwaffentests der 50er und 60er Jahre an der Krustenoberfläche einer hydrogenetischen Tiefseemangankruste und an diagenetischen Manganknollen gemessen. Die Einbaueffizienz wurde bei der Mangankruste mit $14 \pm 8\%$ bestimmt, bei den Manganknollen mit $160 \pm 70\%$.

Weiterhin konnte durch die hohe Nachweisempfindlichkeit der AMS das Isotopenverhältnis der Kernwaffen-produzierten Pu-Isotope ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu und ^{244}Pu in den Manganknollen bestimmt werden.

Im Rahmen der Arbeit wurde erstmals eine hydrogenetische Tiefseemangankruste aus dem Südpazifik, die über einen Zeitraum von 15 Ma gewachsen war, auf den Gehalt von SN-erzeugten ^{244}Pu untersucht. Es wurde ein Ereignis ^{244}Pu nachgewiesen, was unter Berücksichtigung der Effizienz für den Einbau einer Eintragsrate im Bereich von $300 - 28000 \text{ }^{244}\text{Pu cm}^{-2}\text{Ma}^{-1}$ auf die Erdoberfläche entspricht.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Motivation	1
1.1	SN-erzeugte Aktiniden in Mangankrusten	1
1.1.1	Beweggründe für die Suche nach SN-erzeugten Radionukliden in terrestrischen Archiven	2
1.1.2	Eine Auswahl geeigneter Aktiniden	3
1.2	Weitere Anwendungen der AMS	6
2	Aktiniden aus Supernovae	8
2.1	Einführung	9
2.2	Nukleosynthese und SN-Häufigkeit	13
2.2.1	Nukleosynthese der Aktiniden	13
2.2.2	Explosionsverlauf einer Supernova	17
2.2.3	Supernovarate	20
2.2.4	Durchgangsrate durch Explosionswolken	22
2.3	Interplanetarer Transport	25
2.3.1	Die Umgebung des Sonnensystems	25
2.3.2	Die Grenzen des Sonnensystems	26
2.3.3	Nachweis von interstellarem Staub im interplanetaren Raum mit Raumsonden	26
2.3.4	Nachweis von interstellarem Staub in der Erdatmosphäre	28
2.4	Effektivität des interplanetaren Transports	29
2.5	Radionuklidflüsse auf die Erdoberfläche	32
2.5.1	Anreicherung der ISM mit langlebigen Radionukliden	32
2.5.2	Kontinuierlicher Eintrag	33
2.5.3	Gepulster Eintrag	34
2.6	Terrestrischer Transport	38

2.6.1	Mangankonkretionen als terrestrische Archive	38
2.6.2	Atmosphärischer Transport	41
2.6.3	Ozeanischer Transport	42
3	AMS-Messung von Aktiniden	45
3.1	AMS: Einführung	46
3.1.1	Das Prinzip der AMS-Messung	46
3.1.2	Verluste bei der AMS-Messung	47
3.2	Chemische Probenaufbereitung	48
3.2.1	Auflösen der Proben	49
3.2.2	Ca-Oxalat-Fällung	50
3.2.3	Extraktionchromatographie	52
3.2.4	Sputterkathoden	54
3.3	Re-Sputtern	56
3.4	Experimenteller Aufbau	58
3.4.1	Gesamtaufbau	58
3.4.2	Detektorsystem	60
3.4.3	Signalverarbeitung und Datenaufnahme	62
3.4.4	Vorteile der Münchner Anlage	64
3.5	Test der Messmethode	65
3.5.1	Eindimensionale Testspektren	65
3.5.2	Ausbeute verschiedener negativer Molekülionen	68
3.5.3	Messung von Untergrund bei Masse 244	70
3.5.4	Spektren verschiedener Aktinidenisotope	73
3.6	Vergleich mit anderen Messmethoden	75
4	Experimentelle Ergebnisse	77
4.1	Messung von Kernwaffen-Plutonium	78
4.1.1	Hydrogenetische Tiefseemangankruste 237KD	78
4.1.2	Diagenetische Tiefseemanganknollen 251 GBH	80
4.1.3	Vergleich der Manganknollen 251 GBH mit der Mangankruste 237 KD	83
4.2	Eindringtiefe des Plutonium in Mangankrusten	84
4.3	Erste Messung von ^{244}Pu aus SN	85
4.3.1	Beschreibung der Probe	85

4.3.2	^{244}Pu -Messung der Probe	86
4.4	Mögliche Untergrundkanäle	89
4.4.1	Untergrund aus der Erdkruste aus primordialer Pro- duktion	89
4.4.2	Anthropogener Untergrund	90
4.4.3	Untergrund im Tracer	90
4.4.4	Ergebnis der Untergrundbetrachtung	91
4.5	Diskussion des Messergebnisses	91
5	Ausblick	93
A	Der Querschnitt $\sigma(r)$ von SN-Wolken	95
B	Modell für den interplanetaren Transport	99
C	Liste von Überriesen in Sonnensystemnähe	104
D	Weitere Aufgaben der AMS	105

Kapitel 1

Einleitung: Beweggründe für die Entwicklung von AMS mit Aktiniden

1.1 Nachweis von Supernova-erzeugten Aktiniden in Tiefseemangankrusten

Im Jahre 1054 n. Chr. wird in alten chinesischen, koreanischen und japanischen Aufzeichnungen von einer Leuchterscheinung am Himmel im Sternbild des Stieres berichtet, die zum Zeitpunkt ihrer größten Intensität auch am Tage sichtbar war [Pas98, UB81]. Diese Erscheinung kann aller Wahrscheinlichkeit nach auf eine Supernova (im weiteren Verlauf der Arbeit „SN“) zurückgeführt werden, deren erste Signale damals gerade die Erde erreichten. Sucht man heute in dem von den mittelalterlichen Astronomen angegebenen Bereich des Himmels, so findet man dort auch tatsächlich einen SN-Überrest, der wegen seiner eigentümlichen Form als Krebsnebel bezeichnet wird und dessen erstes Erscheinen in Form einer SN-Explosion sich auf Grund der derzeitigen Ausdehnung und der Geschwindigkeit, mit der die Wolke expandiert, auch auf die Zeit um die Jahrtausendwende zurückdatieren lässt. Der Krebsnebel befindet sich etwa 2000 pc von der Erde entfernt und hat in den vergangenen etwa 950 Jahren, von der Erde aus gesehen, eine Ausdehnung von knapp 4 pc erreicht und wird weiter expandieren, und dabei Material aus dem interstellaren Raum aufsammeln. Nach etwa 1 000 000 Jahren, bei einer Ausdehnung von etwa 50 pc, wird

die Supernovaschockfront zum Stillstand kommen [Sch88] und dabei eine leergefegte Blase hinterlassen, mit einer Hülle, die neben dem Auswurf der Supernova auch aus verdichteter interstellarer Materie (ISM) besteht und sich langsam mit der umgebenden ISM wieder vermischt.

Nun kann angenommen werden, dass unser Sonnensystem auf dem Weg durch die Galaxis immer wieder einmal auf derartige Blasen (wie häufig das der Fall sein könnte, wird im 2. Kapitel abgeschätzt werden) trifft, wobei Material auf die Erde eingetragen werden kann und in Folge Signaturen durch langlebige, in SNe erzeugten Radionukliden in geologischen Archiven entstehen. ^{60}Fe wurde hierbei bereits als erstes SN-erzeugtes Radionuklid in drei aufeinander folgenden Schichten in einer Tiefseemangankruste nachgewiesen [KKF⁺99]. Tiefseemangankrusten eignen sich aufgrund ihrer geringen Wachstumsraten von nur wenigen mm/Ma für eine derartige Untersuchung besonders gut, da innerhalb kleiner Schichtdicken große Zeiträume abgedeckt sind und folglich in ihnen eingebautes Material stärker konzentriert ist, als in schneller wachsenden geologischen Formationen.

Die mittlere, zwischen 3.7 und 5.9 Millionen Jahre alte Schicht der untersuchten Mangankruste aus [KKF⁺99] zeigt dabei eine Überhöhung der ^{60}Fe -Konzentration, was mit dem Durchgang unseres Sonnensystems durch eine Supernovaschockfront während dieses Zeitraums interpretiert werden kann.

1.1.1 Beweggründe für die Suche nach SN-erzeugten Radionukliden in terrestrischen Archiven

Ereignet sich eine SN sehr nahe an der Erde, d.h. in einem Abstand von 10 pc oder weniger, so kann die dabei entstehende Strahlung einen Einfluss auf die Biosphäre nehmen [Rud74, WCBW76, RMC78] und eventuell sogar Massensterben von Lebewesen zur Folge haben. Massensterben, also das Verschwinden hoher Anteile der Tier- und Pflanzenarten von der Erde innerhalb sehr kurzer Zeiträume, haben sich in der prähistorischen Vergangenheit häufig ereignet. Seit Beginn des Phanerozoikums, das den Zeitraum seit der Entstehung komplexer Lebensformen auf der Erde vor etwa 600 Ma bezeichnet, konnten knapp 30 Fälle von Massensterben mariner Lebensformen

beobachtet werden [RJ86]. Der bekannteste Fall für ein Massensterben ist das Verschwinden der Dinosaurier vor 60 Ma am Übergang vom Kreide- zum Tertiärzeitalter. Ursprünglich wurde als Ursache für das Aussterben der Dinosaurier sogar eine nahe SN-Explosion in Betracht gezogen [RT71]. Mittlerweile wird aber durch den Nachweis einer Iridiumüberhöhung in geologischen Schichten am Übergang der Tertiär- zur Kreidezeit ein Meteoriteneinschlag als die wahrscheinlichste Ursache für das Aussterben der Dinosaurier gesehen [AAAM80, RJ86]. Durch den Nachweis von SN-produzierten Isotopen in geologischen Proben ist die Möglichkeit, Analogien zwischen bestimmten Massensterben und SN-Ereignissen zu ziehen, durchaus denkbar, ähnlich dem Aussterben der Dinosaurier aufgrund des Meteoriteneinschlages durch den Nachweis der Iridiumanomalie, was einer Suche nach derartigen Signaturen besonderes Interesse verleiht.

Ein weiterer Beweggrund, SN-produzierte Radionuklide nachzuweisen, ist die Möglichkeit, den früheren Weg unseres Sonnensystems durch die Galaxis nachzuvollziehen. SNe reichern über die Explosionswolken, welche über einen bestimmten Zeitraum auch optisch beobachtbar sind, die ISM mit langlebigen Radionukliden an. Eine Variation in der Anreicherung der SN-erzeugten Radionuklide in geologischen Proben kann hierbei einen Hinweis geben, ob sich unser Sonnensystem auf seinem Weg durch die Galaxis in früherer Zeit in einer Umgebung mit erhöhter oder verminderter SN-Rate befunden hat. Der direkte Nachweis und Vergleich der Häufung langlebiger Radionuklide aus SNe birgt schließlich auch die Möglichkeit, Nukleosynthesemodelle für die schweren Elemente direkt zu verifizieren. Bislang besteht keine vollständige Klarheit über den Ort und die Häufigkeit des Auftretens von r-Prozess-Ereignissen [CTT91a] in der Galaxis. Durch den direkten Nachweis von r-Prozess-Nukliden wie ^{244}Pu aus der ISM könnte hier neue Information gewonnen werden.

1.1.2 Eine Auswahl geeigneter Aktiniden

Neben dem langlebigen ^{60}Fe , von dem bereits Signaturen aus interstellarem Ursprung in Tiefseemangankrusten nachgewiesen wurden, erscheinen die in der Tabelle 1.1 angegebenen Aktiniden aus den nachfolgenden Gründen für einen Nachweis in geologischen Archiven gut geeignet:

Nuklid	$T_{1/2}$
^{60}Fe	1.5 Ma [PKNSE95]
^{244}Pu	80.8 Ma [nds86]
^{247}Cm	15.6 Ma [PKNSE95]
^{248}Cm	0.34 Ma [PKNSE95]

Tabelle 1.1: Liste langlebiger Aktiniden, die zum Nachweis von SNe geeignet sind, mit deren Halbwertszeiten im Vergleich zu ^{60}Fe , das bereits in einer Tiefseemangankruste nachgewiesen wurde [KKF⁺99]

- Durch die langen Halbwertszeiten $T_{1/2} > 0.3 \text{ Ma}$ der Nuklide ist ein großer geologischer Zeitraum abgedeckt, in dem nach Signaturen vergangener SNe gesucht werden kann und innerhalb dessen eine reelle Chance besteht, noch eine ausreichende Menge lebender Kerne zu finden. Vor allem ^{244}Pu sticht hier mit seiner großen Halbwertszeit von 80 Ma hervor und deckt damit einen Zeitraum von mehreren hundert Millionen Jahren ab. ^{248}Cm stellt mit seiner kurzen Halbwertszeit einen Grenzfall auf der anderen Seite der Skala da. Dieses Nuklid ist nur zum Nachweis sehr junger SN-Ereignisse geeignet.
- Die Halbwertszeiten der Nuklide sind sehr viel kleiner als das Alter unseres Sonnensystems: $T_{1/2} \ll 4.56 \text{ Ga}$. Die heute noch auf der Erde in großen Mengen existierenden Thorium- und Uranisotope stammen aus vergangenen SN-Ereignissen, die sich vor der Entstehung des Sonnensystems ereignet haben und in denen auch die angegebenen Nuklide erzeugt wurden. Aufgrund ihrer Halbwertszeiten sind letztere aber fast vollständig zerfallen. Wie eine Abschätzung in Abschnitt 4.4 zeigt, besteht keine Gefahr der Interferenz durch die primordialen Radionuklide.
- Interferenz durch anthropogen produzierten Untergrund, zum Beispiel aus Kernwaffentests, kann in den Mangankrusten nahezu ausgeschlossen werden. Wie die Messungen in den Abschnitten 4.1.1 und 4.2 zeigen, lagert sich Plutonium nur an den Oberflächen der untersuchten Mangankrusten an, für Curium wird ein ähnliches Verhalten erwartet. Es genügt also, für eine Messung von SN-erzeugten Radionukliden die Oberflächen der Proben sorgfältig zu entfernen.

- Natürlicher Untergrund aus kosmogener Produktion durch Spallationsreaktionen kosmischer Strahlung an atmosphärischen Atomen ist für ^{60}Fe sehr gering und vernachlässigbar, Aktiniden werden aufgrund des Fehlens schwerer Mutterkerne überhaupt nicht kosmogen in der Atmosphäre erzeugt. Hier kann Interferenz also auch ausgeschlossen werden.

Neben den obengenannten Vorteilen besitzen die Aktiniden ^{244}Pu , ^{247}Cm und ^{248}Cm zusätzliche Vorteile gegenüber ^{60}Fe :

- Unter den Aktiniden gibt es keine stabilen Isotope, wodurch Aktiniden chemisch nahezu beliebig hoch angereichert werden können. Es besteht also kaum eine Beschränkung in der Wahl der Probenmenge, da störendes Matrixmaterial fast vollständig entfernt werden kann. Im Gegensatz dazu besteht bei ^{60}Fe eine Einschränkung durch die stabilen Eisenisotope, die das ^{60}Fe verdünnen und eine chemische Anreicherung limitieren und somit äußerst sensitive Messverfahren notwendig machen.
- Ein Problem der AMS ist die Abtrennung des gesuchten Isotops von den Nachbarisotopen des gleichen Elements. Bei den Aktiniden wird dieses Vorhaben vereinfacht, da durch das Fehlen stabiler Isotope nur eine geringe Menge an Nachbarisotopen vorhanden sind.
- Ein weitere Schwierigkeit in der AMS ist die Abtrennung stabiler Isobare, die im gleichen Ladungszustand die gleiche magnetische Steifigkeit wie das gesuchte Isotop besitzen, wie z.B. das stabile ^{60}Ni und ^{60}Fe . Chemisch gelingt dies normalerweise nur unvollständig, physikalisch ist die Trennung aufwendig, zum Beispiel durch einen gasgefüllten Magneten und geeignete Detektoren [Kni96]. Die betrachteten Aktiniden besitzen jeweils nur relativ kurzlebige Isobare, ein Vorhandensein in den Proben in nachweisbaren Mengen ist also auszuschließen und somit ein elaboriertes Trennverfahren nicht notwendig.

1.2 Weitere Anwendungen der AMS mit Aktiniden

Obwohl das Hauptziel dieser Arbeit die Erforschung von SN-erzeugten Aktiniden in terrestrischen Archiven mittels AMS darstellt, sollen auch einige wichtige weitere Anwendungen in der Messung von Aktiniden mittels AMS diskutiert werden.

Die AMS ist aufgrund ihrer hohen Sensitivität, ihrer großen Isotopenselektivität, ihrer Untergrundfreiheit und durch die Möglichkeit, kleinste Probenmengen zu verwenden, bei der Messung von bestimmten Isotopen vielen Standardmessmethoden überlegen, siehe dazu auch Abschnitt 3.6. Für die Verwendung der AMS in der Messung von Aktiniden eröffnet sich ein breites Anwendungsspektrum, wie die Aufzählung der folgenden Aufgabenstellungen zeigt. Die einzelnen Bereiche werden im Anhang D genauer diskutiert:

- Messung von geringsten Kontaminationen durch Aktiniden im Lebensraum des Menschen
- Überwachung der Einhaltung von Nonproliferations-Bestimmungen durch die sensitive Messung von aussagekräftigen Isotopenverhältnissen im nahen Bereich vermuteter Anlagen zur Produktion von Kernwaffen
- Anwendungen in der Dosimetrie, d.h. Rekonstruktion von Neutronendosen durch die Verwendung bestimmter Uran- und Plutoniumisotope als Neutronenmonitore
- Anwendung bei der Entwicklung der nächsten Generation von Neutrino-Detektoren, d.h. Messung des ^{238}U -Gehalts im Szintillator-Material Gadolinium

Zum Aufbau dieser Arbeit

Der folgende Hauptteil der vorliegende Arbeit wurde in drei Teile gegliedert:

- Im ersten Teil im folgenden 2. Kapitel werden zuerst eingehend die physikalischen Grundlagen der Erzeugung und des Transports von Aktiniden aus SNe behandelt. Das Ziel dieses Kapitels besteht vor allem

in einer Abschätzung der in den Tiefseemangankrusten zu erwartenden Signale.

- Im 3. Kapitel, erfolgt die Beschreibung des Messablaufes und des Messapparates, der für die Messung der SN-produzierten Radionuklide im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde. Am Ende des Kapitels werden Testmessungen und Testspektren diskutiert.
- Das 4. Kapitel beschreibt schließlich erste Messungen die bereits im Rahmen dieser Arbeit zur Suche von SN-erzeugtem ^{244}Pu in einer Tiefseemangankruste durchgeführt wurden, desweiteren Messungen von Plutonium aus Kernwaffentests in Tiefseemangankongregationen.

Im 5. Kapitel erfolgt ein Ausblick über geplante weitere Messungen.

Kapitel 2

Entstehung und Transport von Aktiniden aus Supernovae

Im Rahmen dieses Kapitels erfolgt eine Abschätzung der zu erwartenden Signale der in der vorangegangenen Einleitung in Tabelle 1.1 vorgestellten SN-erzeugten Radionuklide in Tiefseemangankrusten.

Im ersten Abschnitt werden in einer Einführung die unterschiedlichen Möglichkeiten des Eintrags der Radionuklide aus SNe auf die Erde diskutiert.

Nachfolgend erfolgt im zweiten Abschnitt eine kurze Beschreibung über die Nukleosynthese der Aktiniden in SNe und eine Abschätzung der SN-Rate in der Galaxis, sowie der Häufigkeit des Aufeinandertreffens unseres Sonnensystems mit SN-Überresten.

Im dritten und vierten Abschnitt des Kapitels wird anhand von Beobachtungen über interstellare Materie in unserem Sonnensystem die Effizienz des interstellaren und des interplanetaren Transportes der Radionuklide diskutiert und abgeschätzt.

Schließlich erfolgt im fünften Abschnitt eine Abschätzung der Menge der auf die Erdoberfläche eingetragenen Radionuklide und im sechsten Abschnitt eine Diskussion der Effizienz des atmosphärischen und ozeanischen Transportes und der Einbauwahrscheinlichkeit der betrachteten Nuklide in Tiefseemangankrusten.

2.1 Einführung

Ein Eintrag von SN-Produzierten, langlebigen Radionukliden auf die Erdoberfläche ist durch drei Kanäle vorstellbar:

- **Gepulster Eintrag:** Eine SN-Explosion erzeugt eine Explosionsschale, bestehend aus Material aus der abgesprengten Sternenhülle und zusammengefügter ISM, und hinterlässt eine leergefegte Blase aus heißem, dünnem Gas [EFS96], wie in Abbildung 2.1 idealisiert dargestellt ist. Dabei kann beim Durchgang unseres Sonnensystems durch die Stoßfront einer Explosionswolke Material auf die Erde eingetragen werden.
- **Kontinuierlicher Eintrag:** SNe reichern die ISM kontinuierlich mit langlebigen Radionukliden an. Über den radioaktiven Zerfall entsteht eine Gleichgewichtskonzentration der Nuklide in der ISM, die von der SN-Häufigkeit, den Produktionsraten und den Halbwertszeiten abhängig ist (siehe dazu Abschnitt 2.5.1). Auf dem Weg des Sonnensystems durch die ISM können die Radionuklide kontinuierlich auf die Erde eingetragen werden.
- **Kosmogene Produktion:** Durch eine nahe SN kann die kosmische Strahlung auf die Erdatmosphäre für kurze Zeit stark erhöht werden. Eine erhöhte Produktion kosmogener Radionuklide, wie z.B. ^{26}Al oder ^{10}Be , in der Erdatmosphäre für kurze Zeit ist die Folge. Aktiniden werden aufgrund des Fehlens schwerer Mutterkerne in der Atmosphäre nicht kosmogen produziert, bei ^{60}Fe liegen die Produktionsraten in der Atmosphäre weit unterhalb der Eintragsraten aus direktem Eintrag. Dieser Kanal spielt folglich für einen Eintrag von Aktiniden und ^{60}Fe keine Rolle.

Idealisiert könnte der zeitliche Verlauf des Eintrages eines bestimmten Radionuklides wie in Abbildung 2.2 aussehen:

- Vor dem Erreichen der Stoßfront wird kontinuierlich Material aus der ISM auf die Erde eingetragen.

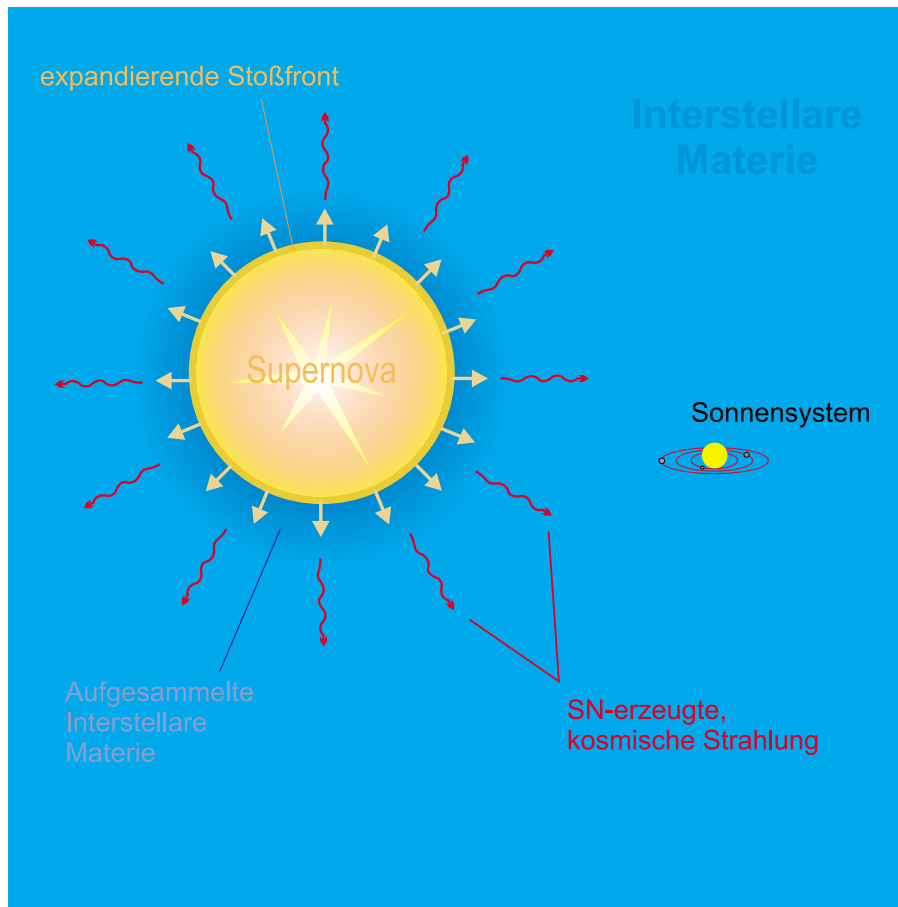


Abbildung 2.1: Idealisierte Darstellung einer SN-Explosion und der Expansion der SN-Stoßfront in der ISM

- Kurz nach dem Zeitpunkt der Explosion erfolgt zuerst pulsartig eine erhöhte Produktion kosmogener Radionuklide in der Atmosphäre, da die kosmische Strahlung der Stoßfront voraus eilt.
- Etwas später erfolgt beim Durchgang durch die Stoßfront pulsartig eine erhöhter Materialeintrag direkt aus der Stoßfront.
- Innerhalb der leergefegten Blase ist der kontinuierliche Materialeintrag, im Vergleich zu außerhalb, reduziert.
- Nach Durchlaufen der Blase erfolgt beim erneuten Durchgang durch die Stoßfront wieder pulsartig ein erhöhter Materialeintrag, diesmal etwas

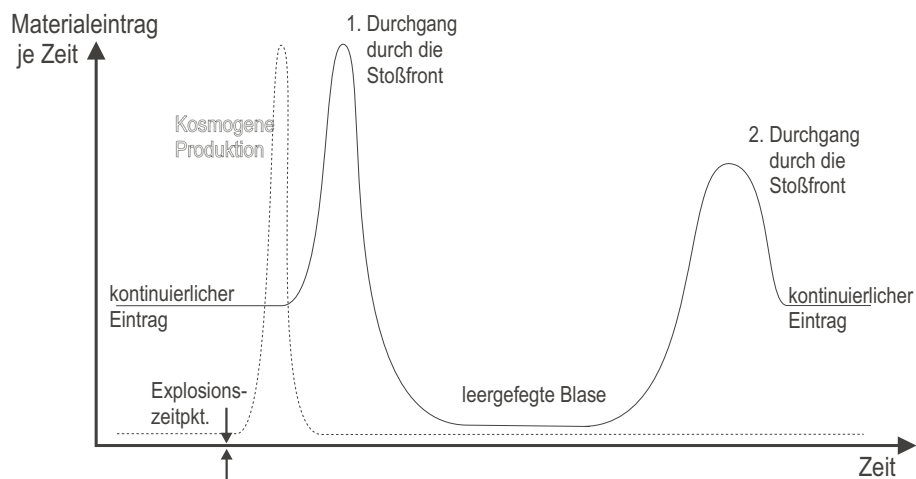


Abbildung 2.2: Idealisierte Darstellung des zeitlichen Verlaufs des Eintrags von SN-Material auf die Erdoberfläche beim Durchgang durch eine SN-Stoßfront. Die Signalthöhen sind dabei willkürlich gewählt.

niedriger und dafür länger andauernd, da sich die Stoßfront kontinuierlich verbreitert.

- Nachfolgend wird wieder kontinuierlich Material aus der ISM eingetragen.

Ein Nachweis von SN-erzeugten langlebigen Radionukliden in einem datierten geologischen Archiv kann zerfallskorrigiert einen ähnlichen Verlauf zeigen. Die Überhöhung des Pulses beim Durchgang durch die Stoßfront gegenüber dem kontinuierlichen Eintrag ist dabei abhängig von der Produktionsmenge des Radionuklids in der SN im Verhältnis zur vorhandenen Dichte des Radionuklids in der ISM. Letztere ist vor allem von SN-Häufigkeit, der r-Prozesshäufigkeit in SNe, den Produktionsraten und der Halbwertszeit abhängig. Eine Abschätzung und ein Vergleich der Eintragsraten erfolgt in den Abschnitten 2.5.2 und 2.5.3.

Durch verschiedene Szenarien kann aber auch eine Modifikation des Schemas in Abbildung 2.2 erfolgen:

- Vorstellbar ist, dass das Sonnensystem zwar auf eine ältere SN-Wolke trifft, zum Zeitpunkt der Explosion aber noch weit von ihr entfernt war. In diesem Fall ist der Puls der kosmogenen Radionuklide möglicherweise

nicht nachzuweisen, nur langlebige Radionuklide aus der Wolke werden auf die Erde eingetragen.

- Ein Szenario mit gegenteiligem Effekt ist ebenfalls vorstellbar: In der Nähe des Sonnensystems ereignet sich eine SN, welche vielleicht eine nachweisbare Menge kosmogener Radionuklide in der Erdatmosphäre erzeugt. Das Sonnensystem bewegt sich aber von der Stoßfront weg und läuft ihr davon, so daß keine Radionuklide aus der Stoßfront nachgewiesen werden. Ein Entkommen ist aber nur möglich, wenn sich das Sonnensystem in einem ausreichenden Abstand zur SN befindet, so dass es durch die sich verlangsamende Stoßfront nicht mehr eingeholt werden kann.
- Streift das Sonnensystem nur den Rand einer Explosionswolke, so wird nur ein einmaliger gepulster Eintrag innerhalb eines Zeitraumes des kontinuierlichen Eintrages erfolgen, ohne verminderten Eintrag innerhalb der leergefegten Blase.
- Weitere Möglichkeiten für eine Modifikation der Signalhöhen und -formen ergeben sich aus der Überlegung, dass sich mehrere SNe innerhalb einer Blase ereignen und diese immer weiter aufblasen, wie im Fall des SN-Überrests Cassiopeia A geschehen, welcher mittlerweile auf einen Radius von 100 pc ausgedehnt ist.

Wie bereits in der Einleitung auf S.2 erläutert, wurde bei der erstmaligen Messung von ^{60}Fe [KKF⁺99] in einer ca. 4 bis 6 Millionen Jahre alten Schicht einer Tiefsee-Mangankruste eine Überhöhung des ^{60}Fe -Flusses in die Kruste gefunden, was eventuell mit dem Durchgang unseres Sonnensystems durch eine SN-Schockfront während dieses Zeitraums interpretiert werden kann. In der jüngeren Schicht war der ^{60}Fe -Fluss deutlich vermindert, was bedeuten kann, dass sich unser Sonnensystem z.Zt. in einer leergefegten Blase einer SN befindet. Hierzu gibt es auch weitere Hinweise, siehe dazu Abschnitt 2.3 und Referenzen [GGM⁺94, GC93, BLFVM93]). Die Tatsache, dass dennoch ^{60}Fe in der jüngsten Schicht nachgewiesen werden konnte, lässt die Spekulation zu, dass unser Sonnensystem vielleicht gerade die heiße, leergefegte Blase verlässt und wieder in den Randbereich der SN-Wolke

eindringt.

2.2 Nukleosynthese und SN-Häufigkeit

In diesem Abschnitt des 2.Kapitels erfolgt zu Beginn eine Abschätzung der Ausbeuten der Aktiniden in SNe mittels einer einfachen Betrachtung der Nukleosynthese.

In der zweiten Hälfte dieses Abschnittes wird die Rate des Zusammentreffens unseres Sonnensystems mit SN-Überresten eines bestimmten Alters abgeschätzt, um eine Größenordnung der Zeiträume zu finden, innerhalb derer eine Suche nach SN-produziertem Material in terrestrischen Archiven sinnvoll erscheint.

2.2.1 Die Nukleosynthese der Aktiniden

Die Nukleosynthese der Aktiniden, wie z.B. ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U , ^{244}Pu ^{247}Cm und ^{248}Cm ist nach heutigen Vorstellungen auf den sogenannten schnellen Neutroneneinfang-Prozess (rapid neutron capture process oder r-Prozess) zurückzuführen, der sich vermutlich vor allem bei Kernkollaps-SN (SN vom Typ II und Ib/c) ereignet.

Dabei werden durch die hohen Neutronendichten, die während einer SN-Explosion erzeugt werden, durch mehrfachen Neutroneneinfang an leichteren Kernen neutronenreiche Kerne gebildet, die sich durch anschließenden, z.T. mehrfachen β -Zerfall in Kerne höherer Kernladungszahl umwandeln.

Durch wiederholten, mehrfachen Neutroneneinfang mit nachfolgendem β -Zerfall werden innerhalb kurzer Zeit sukzessive immer schwerere Elemente bis zu den Aktiniden und wahrscheinlich darüber hinaus gebildet. Der Nukleosynthesepfad bewegt sich dabei entlang der sogenannten Neutronen-Dripline, außerhalb der Neutroneneinfang energetisch nicht mehr möglich ist.

^{60}Fe wird, neben dem r-Prozess, durch den s-Prozess (slow neutron capture process) erzeugt, bei dem in höheren Brennphasen der Sterne und bei sehr viel geringeren Neutronendichten als beim r-Prozess, entlang des Stabilitätstailes im Periodensystem sukzessive immer schwerere Nuklide

durch Neutroneneinfang mit nachfolgendem β -Zerfall aufgebaut werden.

Die folgende einfache Abschätzung der relativen r-Prozess-Ausbeuten der Aktiniden stammt aus [CTT91b].

Für eine Abschätzung die r-Prozess-Ausbeuten müssen die Häufigkeiten der kürzerlebigen Mutterkerne der betrachteten Radionuklide mit einbezogen werden. Für die folgenden Nuklide sind dies:

Tochter nuklid	Mutter nuklide
^{238}U	^{242}Pu , ^{246}Cm , ^{250}Cf
^{244}Pu	^{248}Cm , ^{252}Cf
^{247}Cm	^{251}Cf , ^{255}Fm
^{248}Cm	^{252}Cf

Tabelle 2.1: Tabelle mit SN-erzeugten, langlebigen Aktiniden und deren Mutter nukliden

Die Nuklide besitzen dabei die in der folgenden Tabelle angegebenen Halbwertszeiten:

Töchter:	^{238}U	^{244}Pu	^{247}Cm	^{248}Cm
$T_{1/2}$	$4.468 \cdot 10^9 \text{ a}$	$8.08 \cdot 10^7 \text{ a}$	$1.56 \cdot 10^7 \text{ a}$	$3.40 \cdot 10^5 \text{ a}$

Mütter:	^{242}Pu	^{246}Cm	^{248}Cm	^{250}Cf	^{251}Cf	^{252}Cf	^{255}Fm
$T_{1/2}$	$3.750 \cdot 10^5 \text{ a}$	4730 a	s.o.	13.08 a	898 a	2.654 a	20.1 h

Tabelle 2.2: Halbwertszeiten der in Tabelle 2.1 angegebenen SN-produzierten Aktiniden und deren Mutterkerne. Die Halbwertszeit von ^{244}Pu stammt aus [nds86], sonstige Aktiniden aus [PKNSE95].

Die Anzahl der Mutterkerne ist durch eine Linie in der Nuklidkarte beschränkt, jenseits derer der Zerfall der Kerne durch spontane Spaltung dominiert wird. Die Anzahl der Mutterkerne muss weiterhin auf eine effektive Anzahl reduziert werden, da nicht alle Mutterkerne zu 100% über α -Emission zerfallen.

Die effektive Anzahl der Mutterkerne+1 (das Tochter nuklid kann im r-Prozess auch direkt gebildet werden) reduziert sich für ^{238}U von 4 auf 3.35,

für ^{244}Pu von 3 auf 2.85, für ^{247}Cm bleibt die Anzahl bei 3 und für ^{248}Cm reduziert sich die Zahl der Mütter 2 auf 1.95.

Unter der Annahme, dass das Tochternuklid vor dem Zerfall der Mutterkerne und die Mutterkerne mit der gleichen Ausbeute produziert werden, kann an der effektiven Anzahl der Mutterkerne das Verhältnis der Ausbeuten der Tochterkerne abgeschätzt werden. Einen Spezialfall bildet hier das relativ kurzlebige ^{248}Cm , das selbst einen der Mutterkerne des ^{244}Pu darstellt und wahrscheinlich nur in sehr jungen SN-Ereignissen nachgewiesen werden kann. Relativ zu ^{238}U betragen die r-Prozess-Ausbeuten nach dem Zerfall der Mutterkerne: $^{244}\text{Pu}/^{238}\text{U} = 0.85$, $^{247}\text{Cm}/^{238}\text{U} = 0.90$ und $^{248}\text{Cm}/^{238}\text{U} = 0.58$.

Da die solare Häufigkeit von ^{238}U bekannt ist, kann damit in erster Näherung die Häufigkeit der anderen Radionuklide abgeschätzt werden.

Aufgrund verschiedener Ursachen [CTT91b] ist aber die Bildung der Mutterkerne zu gleichen Häufigkeiten nicht konsistent mit den Ergebnissen von detaillierten Simulationen des r-Prozesses. Die relativen Ausbeuten von $^{244}\text{Pu}/^{238}\text{U}$ reichen dabei von 0.12 bis 0.96 [CTT91b], für $^{247}\text{Cm}/^{238}\text{U}$ von 0.01 bis 0.04 [TMK83b].

Relative r-Prozessausbeuten gegenüber Si

Die solare ^{238}U -Häufigkeit relativ zu der von Silizium betrug zu Beginn der Entstehung unseres Sonnensystems nach [AG89] $N_{^{238}\text{U}}/N_{\text{Si}} = 1.81 \cdot 10^{-8}$, bestimmt aus der gegenwärtigen solaren Häufigkeit des ^{238}U . Dabei wird angenommen, dass die im Sonnensystem vorhandenen Elemente alle vor der Entstehung des Sonnensystems gebildet wurden und nach dessen Entstehung vor 4.56 Ga kein Eintrag mehr erfolgte. Für eine Abschätzung der relativen Produktionsrate von ^{238}U gegenüber Si wird in erster Näherung von einer konstanten Produktion der beiden Elemente seit der Entstehung der Galaxis vor etwa 15 Ga [TFK⁺98] bis zur Entstehung des Sonnensystems vor etwa 4.5 Ga ausgegangen. Unter Einbeziehung der mittleren Lebensdauer $\tau_{^{238}\text{U}} = 6.446 \text{ Ga}$ des ^{238}U , des Produktionszeitraumes $\tau_{\text{Prod}} = 10.5 \text{ Ga}$ und der solaren Häufigkeit des ^{238}U gegenüber Si v.o. beträgt das Verhältnis der Produktionsraten:

$$\frac{\Gamma_{^{238}\text{U}}}{\Gamma_{\text{Si}}} = \frac{N_{^{238}\text{U}}}{N_{\text{Si}}} \cdot \frac{\tau_{\text{Prod}}}{\tau_{^{238}\text{U}}} \cdot (1 - \exp(-\frac{\tau_{^{238}\text{U}}}{\tau_{\text{Prod}}}))^{-1} = 6.43 \cdot 10^{-8} \quad (2.1)$$

Aus diesem Produktionsverhältnis lassen sich Werte für die relativen Produktionsraten von ^{244}Pu und ^{247}Cm gegenüber Si in SNe abschätzen, wie in Tabelle 2.3 aufgeführt.

Der Wertebereich für die relative Häufigkeit von ^{60}Fe gegenüber Si wurde aus Nukleosynthese-Rechnungen aus [WW95] bestimmt. Für die Bestimmung des Häufigkeitsbereichs wurden die in [WW95] aufgeführten 17 SN-Modelle für Sternmassen von $11\text{-}40\text{ M}_{\odot}$ ¹ und solarer Metallizität verwendet.

Nuklid	^{60}Fe	^{244}Pu	^{247}Cm
Anteil gegenüber: Si $\cdot 10^6$	$1.5 \cdot 10^1$ bis $7.9 \cdot 10^2$	$7.7 \cdot 10^{-3}$ bis $6.2 \cdot 10^{-2}$	$6.4 \cdot 10^{-4}$ bis $2.6 \cdot 10^{-3}$

Tabelle 2.3: Abschätzung der relativen Häufigkeiten der betrachteten langlebigen Radionuklide gegenüber Si für SN-Produktion. Die Wertebereiche wurden aus den Ergebnissen verschiedener Nukleosynthese-Rechnungen bestimmt. Zu deren Ursprung siehe Text.

Absolute Ausbeuten

Die absolute ^{60}Fe -Produktion in SNe reichen, nach den bereits in der vorangehenden Tabelle verwendeten SN-Modellen von [WW95], von $2.9 \cdot 10^{-6}\text{ M}_{\odot}$ bis $1.1 \cdot 10^{-4}\text{ M}_{\odot}$, entsprechend $5.8 \cdot 10^{49}$ bis $2.1 \cdot 10^{51}$ Kernen ^{60}Fe . Speziell für das SN-Modell S20A einer SN mit $20\text{ M}_{\odot}$ aus [WW95] ergeben sich umgerechnet für die mittlere ^{244}Pu - und ^{247}Cm -Produktion die in Tabelle 3.5.2 angegebenen Wertebereiche:

Nuklid i	^{60}Fe	^{244}Pu	^{247}Cm
Anzahl N_i	$2.2 \cdot 10^{50}$	$1.0 \cdot 10^{47}$ - $7.9 \cdot 10^{47}$	$8.2 \cdot 10^{45}$ - $3.3 \cdot 10^{46}$
Ausbeute in $\text{M}_{\odot}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-8}$ - $1.6 \cdot 10^{-7}$	$1.7 \cdot 10^{-9}$ - $7.0 \cdot 10^{-9}$

Tabelle 2.4: Mögliche absolute Ausbeuten von ^{60}Fe , ^{244}Pu und ^{247}Cm einer $20\text{ M}_{\odot}$ -SN für das SN-Modell S20A aus [WW95].

¹ $\text{M}_{\odot}$ ist die Bezeichnung für „Sonnenmasse“

Anmerkung zur Berechnung absoluter r-Prozess-Ausbeuten in SNe:

Nach [Hil99] kann für eine andere Abschätzung der absoluten ^{244}Pu - oder ^{247}Cm -Ausbeute in einer SN die Menge an r-Prozess-Material in Betracht gezogen werden, welche von einem einzelnen SN-Ereignis ausgeworfen wird: Nach [MC90] beträgt die Menge an r-Prozessmaterial, die von einer SN ausgeworfen wird, etwa $10^{-4} M_{\odot}$. Aus r-Prozess-Rechnungen (z.B. aus [TMK83a]) ergibt sich ein Anteil des ^{244}Pu am gesamten r-Prozessmaterial von etwa 10^{-5} , für die Gesamtausbeute in einer SN erhält man folglich etwa $10^{-9} M_{\odot}^{244}\text{Pu}$, also ca. eine Größenordnung weniger, als mit der oben ausgeführten Rechnung.

Weiter ist anzumerken, dass die oben angegebenen r-Prozess-Ausbeuten für die Aktiniden nur *mittlere* Ausbeuten darstellen. Nach [CTT91b] werden durch theoretische r-Prozessmodelle für Kernkollaps-SNe Ausbeuten vorhergesagt, welche die gemessenen Ausbeuten um einen Faktor $10^3 - 10^5$ übersteigen. Als eine mögliche Folgerung tritt der r-Prozess nur bei einem geringen Anteil der SNe auf; als andere mögliche Folgerung tritt der r-Prozess zwar bei allen SNe auf, jedoch wird nur ein kleiner Anteil des r-Prozess-Materials ausgeworfen [CTT91a]. Dadurch ist ein direkter Vergleich der absoluten Ausbeuten von ^{244}Pu und ^{247}Cm mit der Ausbeute von ^{60}Fe , das auch in anderen Prozessen der stellaren Nukleosynthese erzeugt wird, problematisch.

Bevor der Transport der SN-erzeugten Radionuklide auf die Erdoberfläche diskutiert wird, werden nachfolgend die Entwicklung eines SN-Überrests behandelt und die Rate von SNe in der Galaxis und die Häufigkeit für das Auftreffen unseres Sonnensystems auf SN-Überreste abgeschätzt.

2.2.2 Die Entwicklung eines Supernovaüberrests

Bei der Expansion eines SN-Überrests nach der Explosion wird ISM zusammengefasst und gleichzeitig kühlen die expandierenden Gase ab. Die Explosion hinterlässt dabei eine fast leergefegte Blase, in der sich nur noch sehr heißes Gas geringer Dichte befindet. Die Expansion der SN-Hülle kann durch

drei Phasen beschrieben werden [Sch88]:

- In der ersten Expansionsphase ist die von der Stoßfront zusammengelegte Masse des interstellaren Materials noch kleiner als die Masse der SN-Hülle m_0 . Die Geschwindigkeit der expandierenden Hülle bleibt in dieser Phase annähernd konstant und entspricht der Geschwindigkeit zu Beginn der Explosion von etwa 10 000 km/s.

Geht man von einer kugelsymmetrischen Expansion aus und bezeichnet man den Radius der Stoßfront mit r , so ist die Masse des aufgesammelten Materials gegeben durch $(4\pi/3)\varrho_{ISM}r^3$, wobei ϱ_{ISM} die Dichte der ISM darstellt. Das Ende der ersten Phase ist etwa dann erreicht, wenn die Masse des aufgefegten Materials ungefähr der Masse der abgesprengten Hülle entspricht, also wenn gilt:

$$\frac{4\pi}{3}\varrho_{ISM}r^3 \approx m_0 \quad (2.2)$$

Setzt man für die Hüllenmasse $10 M_\odot$ und für die Dichte der ISM 1 Proton cm^{-3} , was etwa $0.025 M_\odot \text{ pc}^{-3}$ entspricht, so ergibt sich ein Übergangsradius von ungefähr 4 pc.

- Ab der zweiten Expansionsphase dominiert die Masse der aufgefegten Materie die Masse der Stoßfront. Die Expansion der Stoßfront wird durch die thermische Energie des Gases in der Kugel, das eine Temperatur von bis zu 10^9 K besitzt, vorangetrieben, die Stoßfront expandiert adiabatisch. Diese Phase, die auch als Sedov-Phase bezeichnet wird, endet, wenn die Temperatur des expandierenden Gases auf unter 10^6 K abgekühlt ist und die thermische Energie des Gases die Expansion nicht mehr vorantreiben kann, was etwa bei 10 pc der Fall ist.

An diesem Übergang ist die Masse der Stoßfront auf bereits etwa $100 M_\odot$ angewachsen, ihre Geschwindigkeit auf etwa 800 km/s abgebremst.

- In der dritten Expansionsphase wird die Expansionsbewegung nur noch durch den Eigenimpuls des Materials der Stoßfront getrieben. In dieser, auch Schneepflugphase genannten Phase, sinkt aufgrund der

Impulserhaltung mit der zunehmenden Masse der Stoßfront deren Geschwindigkeit:

$$v(r) = \frac{m_* v_*}{\frac{4}{3}\pi \varrho_{ISM} r^3} \quad (2.3)$$

wobei m_* und v_* jeweils die Masse und Geschwindigkeit der Stoßfront am Ende der Sedov-Phase darstellen. Die Masse der abgesprengten SN-Hülle kann hier vernachlässigt werden.

Die zeitliche Entwicklung der Stoßfront mit der Zeit t ergibt sich daraus zu

$$r(t) = \left(\frac{3m_* v_* t}{\pi \varrho_{ISM}} \right)^{\frac{1}{4}} \quad (2.4)$$

Am Ende der Schneepflugphase ist Geschwindigkeit der Stoßfront nach einer Expansionsdauer von etwa 1 Ma bei etwa 50 pc auf etwa 10 km/s gesunken und beginnt dann, sich mit der umgebenden ISM zu vermischen.

Mischung der SN-Wolke mit der ISM

Ein Zeitraum für die Durchmischung der ISM innerhalb der Galaxis wird nach [WBG96] näherungsweise mit der Dauer eines Galaktischen Jahres von 300 Ma angegeben, eine Durchmischung innerhalb eines Radius von etwa 100 pc kann in einem Zeitraum von ungefähr 10 Ma erfolgen.

Aufgrund der Länge dieser Zeiträume zerfallen vor allem die kürzerlebigen SN-erzeugten Radionuklide, wie z.B. ^{60}Fe mit $T_{1/2} = 1.5$ Ma, bereits zum größten Teil, bevor sie sich im angegebenen Umkreis mit der umgebenden ISM vermischen. Dadurch kann ^{60}Fe in eher jungen SN-Wolken als lokal konzentriert angenommen werden. Umgekehrt ist bei eher längerlebigen Nukliden wie ^{244}Pu mit $T_{1/2} = 80$ Ma eine gleichmäßigere Durchmischung in der ISM zu erwarten. Die Halbwertszeit $T_{1/2} = 15.6$ Ma von ^{247}Cm befindet sich genau im Bereich der angenommenen Mischungszeiträume, wodurch mit einer Messung der Häufigkeiten der drei unterschiedlich langlebigen SN-erzeugten Radionuklide in terrestrischen Archiven eventuell Information über die lokale Durchmischung der ISM mit SN-Überresten gewonnen werden kann.

2.2.3 Supernovarate in Sonnensystemnähe

Nach [CTT⁺97] beträgt die galaktische SN-Rate λ_{SN} für Kern-Kollaps-SNe $\lambda_{\text{SN}} = (14 \pm 7) \text{ SNe}/1000 \text{ a}$ ¹. Unter der Annahme, dass die SN-Häufigkeit an einem bestimmten Punkt der Galaxis proportional zur Massendichte an diesem Punkt ist, kann die SN-Rate folgendermaßen abgeschätzt werden:

Die Galaxis besitzt näherungsweise die Form eines oblaten, sehr flachen Ellipsoids, dessen Massendichte vom Zentrum zum Rand hin exponentiell abfällt, ebenso senkrecht zur Hauptebene, so dass deren Massenverteilung in Zylinderkoordinaten r und z durch

$$\rho(z, r) = \rho_0 \cdot \exp\left(-\frac{|z|}{z_0} - \frac{r}{r_0}\right) \quad (2.5)$$

darstellbar ist, wobei nach [BS80] z_0 und r_0 in den Bereichen $70 \text{ pc} < z_0 < 150 \text{ pc}$ und $3 \text{ kpc} < r_0 < 4 \text{ kpc}$ liegen. Damit ist eine „spezifische“ SN-Rate γ_{spez} (je Masse) in der Galaxis gegeben durch

$$\gamma_{\text{spez}} = \frac{\lambda_{\text{SN}}}{\int \rho(r, z) dV} \quad (2.6)$$

wobei das Integral über das gesamte Volumen der Galaxis reicht, deren Radius etwa 15000 pc und deren Höhe einige hundert pc beträgt, so dass auch ohne großen Unterschied für r und z jeweils bis ∞ integriert werden kann. Unser Sonnensystem liegt in r -Richtung etwa $r_{\text{SoSy}} \approx 8.5 \text{ kpc}$ vom Zentrum der Galaxis entfernt, in z -Richtung bei etwa $z_{\text{SoSy}} \approx 0$. Unter Verwendung der mittleren Werte $r_0 = 3.5 \text{ kpc}$ und $z_0 = 105 \text{ pc}$ kann damit die SN-Häufigkeit Γ_{SN} in Sonnensystemnähe abgeschätzt werden durch

$$\Gamma_{\text{SN}} = \rho(z_{\text{SoSy}}, r_{\text{SoSy}}) \cdot \gamma_{\text{spez}} = (8 \pm 4) \cdot 10^{-8} \frac{\text{SN}}{\text{pc}^3 \text{Ma}} \quad (2.7)$$

Etwas anschaulicher entspricht dieser Wert dem Auftreten von 1 SN alle 20 Ma innerhalb eines Radius von 50 pc um das Sonnensystem.

¹In unserer eigenen Milchstraße werden sehr viel seltener SNe beobachtet, nur etwa 3 pro tausend Jahre. Ursache sind Staub- und Gaswolken in verschiedenen Bereichen der Galaxis, die einen grossen Teil des Lichtes der meisten SNe unserer Milchstraße in der Ebene der galaktischen Scheibe absorbieren, so dass diese nicht beobachtet werden können.

Supernovarate über Überriesenhäufigkeit

Eine weiterer Weg, die SN-Rate unter Einbeziehung lokaler Gegebenheiten abzuschätzen, wird durch die Bestimmung der mittleren Dichte von Überriesen in der Umgebung unseres Sonnensystems unter Einbeziehung von deren mittleren Lebensdauern versucht.

Überriesen sind Sterne der Leuchtklasse I, welche eine mehr als 10^4 fach höhere Luminosität als die Sonne besitzen. Die Masse von Überriesen ist mindestens etwa 10 mal so groß wie die Sonnenmasse, ihr Radius kann weit über den Radius der Jupiterbahn hinaus ausgedehnt sein.

Diese Sterne werden mit hoher Wahrscheinlichkeit zu Kernkollaps-SNe. Nach [MMS⁺94] beträgt die Lebensdauer τ_{SR} z.B. für einen Stern der Masse $15 M_{\odot}$ etwa 10 Ma. Hier ist anzumerken, dass die Lebensdauer von verschiedenen Faktoren, wie der Sternenmasse, der chemischen Zusammensetzung des Sternes und weiteren Faktoren abhängt, wodurch eine große Unsicherheit in der Bestimmung der mittleren Lebensdauer bleibt.

Aus mittlerer Lebensdauer τ_{SR} und Dichte n_{SR} der Überriesen in der näheren Umgebung unseres Sonnensystems kann eine SN-Rate $\Gamma_{SN} = n_{SR} \cdot \tau_{SR}$ bestimmt werden.

Für eine Abschätzung wurden aus der Onlinedatenbank der Hipparcos-Mission, [HM97] Sterne der Leuchtklasse I bestimmt, die sich innerhalb eines Radius von etwa 250 pc um das Sonnensystem befinden. Insgesamt wurden 11 Überriesen ermittelt, welche in Tabelle C.1 im Anhang C aufgezählt sind. Damit beträgt die Dichte der Überriesen in der Umgebung von 250 pc um unser Sonnensystem

$$n_{SR} = 1.7 \cdot 10^{-7} pc^{-3} \quad (2.8)$$

Unter der Annahme einer mittleren Lebensdauer τ_{SR} von etwa 10 Ma erhält man als SN-Rate

$$\Gamma_{SN} = 1.7 \cdot 10^{-8} pc^{-3} Ma^{-1} \quad (2.9)$$

was innerhalb eines Umkreises von 50 pc einer SN-Häufigkeit von etwa 1 SN in 100 Millionen Jahren entspricht und um einen Faktor 5 geringer, als der anfangs abgeschätzte Wert.

Eine genauere Abschätzung der SN-Rate auf diesem Weg könnte jedoch unter Verwendung eines größeren Ensembles von Sternen der Leuchtklasse I

erfolgen, also in einem weiteren Umkreis um unser Sonnensystem, wobei hier wiederum eine größere Ungenauigkeit bei der Bestimmung der Abstände zu erwarten ist. Weiterhin wäre für eine genauere Abschätzung auch von Vorteil, die Massen und den aktuellen Entwicklungszustand der Sterne möglichst exakt zu bestimmen, um eine mittlere Lebensdauer zu ermitteln, die mit einem geringeren Fehler behaftet ist.

2.2.4 Durchgangsrates unseres Sonnensystems durch Supernovablasen

In diesem Abschnitt wird diskutiert, mit welcher Rate das Sonnensystem auf Überreste von SNe unterschiedlichen Alters und unterschiedlicher Ausdehnung treffen kann, wozu im Rahmen der Arbeit das folgende einfache Modell entwickelt wurde: Betrachtet man unser Sonnensystem als Projektil, das durch die interstellare Materie wandert, und die SN-Blasen als Targets, die vom Sonnensystem getroffen werden können, so beträgt die Rate $d\Gamma$, mit der unser Sonnensystem auf SN-Blasen mit einem Alter t trifft:

$$d\Gamma = \sigma(t) \cdot v_{\odot} \cdot dn(t) \quad (2.10)$$

$\sigma(t)$ ist dabei der Querschnittsfläche von SN-Blasen mit einem momentanen Alter t , $v_{\odot}$ ist die Geschwindigkeit des Sonnensystems relativ zur ISM und damit relativ zu SN-Wolken. Sobald die Masse der Explosionswolke durch die ISM dominiert wird, ist aufgrund der Impulserhaltung auch die Translationsbewegung der Explosionswolke durch die Bewegung der ISM dominiert, und nicht mehr durch die frühere Bewegung des explodierten Sterns. Dadurch entspricht der Geschwindigkeit des Sonnensystems gegenüber der SN-Wolke der Geschwindigkeit des Sonnensystems in der ISM $v_{\odot}$. $dn(t)$ ist die Dichte von SN-Blasen in der ISM mit einem momentanen Alter $[t, t + dt]$ und kann ausgedrückt werden über die SN-Rate Γ_{SN} aus Gleichung 2.9 durch $dn = \Gamma_{SN} \cdot dt$ wodurch sich für die Trefferrate folgender Ausdruck ergibt:

$$d\Gamma = \sigma(t) \cdot \Gamma_{SN} \cdot v_{\odot} \cdot dt \quad (2.11)$$

Mit $v_{SN}(r) = dr/dt$ als Expansionsgeschwindigkeit der SN im Abstand r vom Explosionszentrum folgt:

$$d\Gamma = \sigma(r) \cdot \Gamma_{SN} \frac{v_{\odot}}{v_{SN}(r)} dr \quad (2.12)$$

Trefferrate für typische Parameter

Geht man von der vereinfachten Annahme einer sphärisch expandierenden SN aus und nähert die Expansionsbewegung der SN-Stoßfront durch die Gleichungen 2.3 und 2.4 der Schneepflugphase aus Abschnitt 2.2.2 an, so kann $\sigma(r)$ explizit bestimmt werden, wie im Anhang A im Detail ausgeführt wird. Die Ergebnisse der Abschätzung der Trefferate Γ des Sonnensystems auf SN-Blasen einer bestimmten maximalen Ausdehnung r und mit einem bestimmten maximalen Alter t sind in Tabelle 2.5 aufgeführt, wofür folgende Werte für die Parameter, welche die Trefferrate bestimmen, als typisch angenommen werden:

$\rho_{\text{ISM}} = 0.025 \text{ M}_{\odot} \text{ pc}^{-3}$: Dieser Wert entspricht einer Dichte von ca. 1 Proton cm^{-3} und stellt einen typischen Wert der Dichte der ISM außerhalb von leergefegten SN-Blasen dar

$v_{\odot} \approx 30 \text{ pc Ma}^{-1}$: Die Geschwindigkeit entspricht etwa der Geschwindigkeit unseres Sonnensystems gegenüber der ISM von 30 km s^{-1} . [GGM⁺94]

$\Gamma_{\text{SN}} = 8 \cdot 10^{-8} \text{ pc}^{-3} \text{ Ma}^{-1}$: Im Abschnitt 2.2.3 abgeschätzte SN-Rate

max. Radius der SN-Wolke	10 pc	20 pc	30 pc
deren max. Alter	3 ka	50 ka	0.25 Ma
Rate	$(3000 \text{ Ma})^{-1}$	$(400 \text{ Ma})^{-1}$	$(100 \text{ Ma})^{-1}$
max. Radius der SN-Wolke	40 pc	50 pc	50 pc
deren max. Alter	0.8 Ma	2 Ma	5 Ma
Rate	$(60 \text{ Ma})^{-1}$	$(20 \text{ Ma})^{-1}$	$(10 \text{ Ma})^{-1}$

Tabelle 2.5: Häufigkeit des Zusammentreffens des Sonnensystems mit Supernovawolken, in Abhängigkeit von deren maximalen Radius und Höchstalter. Es wurde angenommen, dass eine Explosionswolke bei 50 pc zum Stillstand kommt und nicht weiter expandiert.

Bei einem Alter der SN-Wolke von etwa 10 Ma ist bereits wieder eine teilweise Durchmischung der Wolke mit der umgebenden ISM erfolgt (siehe Abschnitt 2.2.2), wodurch ab diesem Alter das Zusammentreffen mit SN-Blasen wieder annähernd mit dem kontinuierlichen Durchgang des Sonnensystems durch die ISM verglichen werden kann.

Die angegebenen Werte sind aus den folgenden Gründen mit Unsicherheiten behaftet: Die Geschwindigkeit des Sonnensystems gegenüber der ISM von etwa 30 pc Ma^{-1} kann aufgrund der Dynamik der ISM im Lauf der Zeit variieren, ebenso kann die Dichte der ISM und die SN-Rate lokal unterschiedliche Werte annehmen. Trotzdem bietet die Tabelle 2.5 einen Anhaltspunkt, innerhalb welcher Zeiträume nach Signaturen der betrachteten Radionuklide aus SNe in terrestrischen Archiven gesucht werden kann.

2.3 Effizienz des interplanetaren Transports

In diesem Abschnitt wird die Frage diskutiert, welcher Anteil des SN-produzierten Materials, das den äußeren Rand unseres Sonnensystems erreicht hat, letztendlich in die Erdatmosphäre eingetragen werden kann, um von dort über die Ozeane in die Mangankrusten zu gelangen. Dabei kann angenommen werden, dass der größte Teil der schweren Elemente ab Eisen in Staubform kondensiert [Eva94] und dadurch leichter in das Sonnensystem eingetragen wird, als die gasförmige Bestandteile der ISM, die durch den Sonnenwind, Strahlungsdruck etc. vom Eindringen in den interplanetaren Raum abgehalten werden können (siehe Abschnitte 2.3.2 ff.). Staubkondensation des ausgeworfenen Materials in der Stoßfront wurde bereits in der sehr jungen SN 1987A eindeutig beobachtet [Eva94].

Im Rahmen dieses Abschnittes werden vor allem aktuelle Beobachtungen und Messungen von ISM in unserem Sonnensystem diskutiert. Im dann folgenden Abschnitt wird in einem einfachen Modell, welches die Gravitationswirkung der Sonne und der Erde und deren Bewegung gegenüber der ISM berücksichtigt, der Anteil des interstellaren Staubflusses abgeschätzt, der die Erdoberfläche erreicht.

2.3.1 Die Umgebung des Sonnensystems

Unser Sonnensystem bewegt sich mit einer Geschwindigkeit von etwa 30 km/s [GGM⁺94] durch eine lokale interstellare Wolke, bestehend aus neutralem und ionisiertem Gas und Staubteilchen, welche zusammen als lokale ISM oder LISM bezeichnet werden. Das Verhältnis von Gas zu Staub beträgt in der ISM dabei etwa 100:1, fast 100% des Gases werden dabei durch H-Atome bestimmt [Eva94]. Die Bewegung des Sonnensystems erfolgt nahezu in Richtung der Ekliptik (2.5° Ablenkung, [GGM⁺94]), also der Ebene der Planetenbewegungen. Diese einige pc ausgedehnte Wolke, welche als „Local Fluff“ oder „local interstellar cloud“ (LIC), bezeichnet wird, besitzt eine Temperatur von etwa 10⁴ K und eine Dichte von ca. 0.1 H-Atome cm⁻³. Die LIC befindet sich ihrerseits in einer 10⁶ K heißen Blase („Local Bubble“) mit geringer Dichte (5 · 10⁻³ H-Atome cm⁻³ und

einer Ausdehnung von bis zu 100 pc, deren Ursprung auf möglicherweise eine oder mehrere SNe zurückzuführen ist [GGM⁺94, GC93, BLFVM93].

2.3.2 Die Grenzen des Sonnensystems

Der Raum, den unser Sonnensystem einnimmt, wird als Heliosphäre bezeichnet. Die Grenze der Heliosphäre, welche auch die Grenze unseres Sonnensystems darstellt und sich vermutlich weit ausserhalb der Planetenbahnen befindet, wird durch eine Grenzschicht, die sogenannte Heliopause gebildet, an der Sonnenwind und ISM aufeinandertreffen. Ein Teil der ISM fließt, ähnlich dem Kielwasser eines fahrenden Schiffes, um die Heliosphäre herum ab. Vor allem interstellares Gas und kleine z.T. geladene Staubteilchen werden vom Eindringen in das Sonnensystem abgehalten. Ursache dafür sind der Sonnenwind, der Strahlungsdruck der Sonne, interstellare Magnetfelder etc. [Wal87]. Dafür kann ein großer Anteil des Staubes, in dem die gesuchten Radionuklide als vorhanden angenommen werden, in das Sonnensystem eindringen, wie die nachfolgende Diskussion von Staubbmessungen im interplanetaren Raum mit Raumsonden und in der Erdatmosphäre mit Mikrowellendetektoren zeigt.

2.3.3 Nachweis von interstellarem Staub im interplanetaren Raum mit Raumsonden

Bisher gibt es nur wenige Messungen interstellarer Materie im Sonnensystem. Messungen mit Staubdetektoren können zur Zeit mit den Raumsonden Ulysses und Galileo durchgeführt werden, weitere Raumsonden jüngerer Missionen sind Cassini und Stardust, welche bald für Messungen zur Verfügung stehen [LG98, GKL99].

In den Detektoren der Sonden können interstellare Staubkörner aufgrund ihrer Geschwindigkeit und Bewegungsrichtung (ungebundener Orbit) von interplanetarem Staub unterschieden werden. Bei Messungen mit der Raumsonde Ulysses wurde im Jupiterbereich ein Fluss interstellarer Materie mit einer Fließrichtung nahezu parallel zur Ebene der Ekliptik nachgewiesen. Der Staubfluss ist dabei konstant in *allen* Breitengraden des Sonnensystem, nicht nur in der galaktischen Ebene, wo sich vor allem der interplanetare Staub konzentriert [GKL99].

Die Größe der gemessenen Staubkörner überstreicht einen Massenbereich von 10^{-15} g bis 10^{-9} g [GKL99]. Das untere Massenlimit wird dabei durch die Nachweisgrenze der Staubdetektoren gebildet [FDG⁺99], die obere Grenze kommt aufgrund der geringen Häufigkeit von Staubteilchen größer als 10^{-9} g zustande.

Die Massen der Staubteilchen entsprechen bei einer angenommenen mittleren Dichte von 2.5 g cm^{-3} und angenommener sphärischer Form einem Durchmesser von 0.1 bis $10 \mu\text{m}$. Die am häufigsten vorkommende Staubkorngröße liegt bei etwa 10^{-13} g oder $0.5 \mu\text{m}$. Die Gesamtmasse des interstellaren Staubes im Sonnensystem wird jedoch dominiert durch Staubteilchen zwischen 10^{-12} g und 10^{-9} g, entsprechend 1 bis $10 \mu\text{m}$ [FDG⁺99]. Diagramme der beobachteten Größenverteilung der Staubteilchen finden sich in [FDG⁺99, LG98, GKL99].

Staubkörner kleiner als $0.1 \mu\text{m}$ werden nicht nur aufgrund der schwierigen Detektierbarkeit sehr selten beobachtet. Die meist geladenen Teilchen werden durch die Magnetfelder am Rande des Sonnensystems zum größten Teil abgedrängt [GKL99]. Der Beitrag dieser Teilchen zur Gesamtmasse des interstellaren Staubes ist vermutlich vernachlässigbar, wie die folgende Betrachtung zeigt: Umgerechnet entsprechen die im Jupiterbereich gemessenen Staubströme einer totalen Massendichte von $7 \cdot 10^{-27} \text{ g cm}^{-3}$. Die wirkliche Massendichte liegt eventuell etwas höher, da der Massenanteil außerhalb des Messbereiches, vor allem bei großen Partikeln, nur sehr ungenau bestimmt werden kann [GKL99]. Nach [FDG⁺99] besitzt die lokale interstellare Wolke eine Massendichte von etwa $7 \cdot 10^{-25} \text{ g cm}^{-3}$, die durch H- und He-Atome dominiert wird. Überlegungen, die kosmische Elementhäufigkeit betreffend, sollte das Gas-zu-Staub Verhältnis etwa 100:1 betragen, also wäre in der LIC eine Staubdichte von $7 \cdot 10^{-27} \text{ g cm}^{-3}$ zu erwarten, entsprechend dem Wert, der im Jupiterbereich gerade durch Ulysses gemessen wurde, was zeigt, dass ein großer Teil des interstellaren Staubes und damit auch kondensierte SN-Materie in das innere Sonnensystem eindringen kann.

Eine genauere Abschätzung des Anteils der ISM, welcher an der Grenze der Heliosphäre ausgefiltert wird, wird in [FDG⁺99] ausgeführt. Diese Abschätzung nähert sich von einer anderen Seite dem Problem und vergleicht die Verteilung von in-situ gemessenen Staubflüssen mit einer theo-

retischen Massenverteilung, um aus der Differenz beider Verteilungen den an der Heliopause ausgefilterten Anteil zu berechnen. In dieser Betrachtung werden Staubkörner im Massenbereich unterhalb 10^{-15} g fast vollständig abgeschirmt, im Massenbereich 10^{-15} g bis $1.5 \cdot 10^{-12}$ g zu etwa 98%, Teilchen oberhalb dieser Größe kommen wahrscheinlich ohne Verluste durch. Der Bereich von 10^{-15} g bis $1.5 \cdot 10^{-12}$ g, welcher die Gesamtmasse der leichten und ausgefilterten Teilchen dominiert, entspricht einer Gesamtdichte von $5 \cdot 10^{-27} \text{ g cm}^{-3}$.

Vergleicht man diesen Wert mit den in-situ gemessenen $7 \cdot 10^{-27} \text{ g cm}^{-3}$ Staub, der in das Sonnensystem eindringt, so zeigt sich, dass etwas mehr als ein Drittel des Staubes der LISM vom Eindringen in das Sonnensystem abgehalten wird.

2.3.4 Nachweis von interstellarem Staub in der Erdatmosphäre

Durch Radarmessungen der Ionisationsspuren von Meteoroiden in der Erdatmosphäre kann interstellarer Staub direkt auf der Erde nachgewiesen werden [Hug96, TBS96, Fly97]. Meteoroiden interstellaren Ursprungs werden wiederum durch ihre Geschwindigkeit und Richtung von Meteoroiden stellaren Ursprungs unterschieden. Es wurde eine saisonale Variation der interstellaren Staubflüsse beobachtet, Ursachen sind nach [TBS96]:

- Ein Gravitationslinseneffekt der Sonne bewirkt eine Fokussierung der ISM in einem Kegel auf der zur Bewegungsrichtung der Sonne abgewandten Seite, dadurch ist die Dichte der ISM auf der „Lee-Seite“ des Sonnensystems höher, als auf der „Luv-Seite“.
- Die Erde beschreibt eine Spirale entlang der Sonnenbahn und bewegt sich periodisch mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten relativ zum ISM-Fluss im Sonnensystem, was eine jahreszeitliche Variation der Staubflüsse nach sich zieht.
- Die Intensität der Ionisationskanäle ist abhängig von der Geschwindigkeit der Staubkörner, bei antiparaller Bewegung der Erde zur ISM liegen mehr Meteoriten unterhalb der Detektionsschwelle, eine weitere

saisonale Variation der in der Atmosphäre beobachtbaren Flüsse ist die Folge.

2.4 Effektivität des interplanetaren Transports

Nach der vorangehenden Diskussion der Beobachtungen von ISM im Sonnensystem dringt vermutlich mehr als die Hälfte des interstellaren Staubes, welcher den Rand unseres Sonnensystems erreicht, in das Sonnensystem ein. Für diesen Anteil erfolgt in diesem Abschnitt die Beschreibung eines im Rahmen dieser Arbeit gerechneten Modelles, um den Fluss von interstellarem Staub ϕ auf die Erdoberfläche im Verhältnis zum Fluss ϕ_0 relativ zum Sonnensystem bestimmen zu können. Unter der Annahme, dass die betrachteten Radionuklide fast vollständig im interstellaren Staub kondensiert sind [Eva94], gilt dieses Verhältnis ebenso für die Flüsse der Radionuklide. Im Detail wird auf das Modell in Anhang B eingegangen, in diesem Abschnitt werden vor allem die Grundlagen und das Ergebnis des Modells diskutiert. Der Fluss ϕ_0 des interstellaren Staubes auf unser *Sonnensystem* kann einfach durch

$$\phi_0 = n_{ISM} \cdot v_{\odot} \quad (2.13)$$

dargestellt werden, mit n_{ISM} als Dichte des interstellaren Staubes in der ISM und $v_{\odot}$ als Geschwindigkeit des Sonnensystems in der ISM. ϕ_0 wird dabei als konstant angenommen.

Der Fluss ϕ auf die Erdoberfläche variiert jedoch mit der Position der Erde entlang der Bahn um die Sonne. Zwei Gründe dafür wurden bereits im Abschnitt 2.3.4 angegeben:

- Eine Fokussierung hinter der Sonne, aufgrund deren Gravitationswirkung bewirkt eine Variation der Dichte n des interstellaren Staubes im Sonnensystem.
- Durch die Bewegung der Erde um die Sonne (Winkel γ) wird jahreszeitlich die Flussgeschwindigkeit und -Richtung und damit den Fluss ϕ verändert.

Zusätzlich zu diesen Punkten werden im Modell noch die folgenden beiden Punkte berücksichtigt:

- Zur Bestimmung des Staubflusses auf die Erdoberfläche wird die effektive Querschnittsfläche A_{eff} der Erde berücksichtigt: Aufgrund der Graviationswirkung der Erde werden auch solche Staubkörner die Erde erreichen, die sich mit einem größeren Stoßparameter als den Erdradius $r_{\oplus}$ annähern. Somit wird die effektive Querschnittsfläche A_{eff} , in Abhängigkeit von der Geschwindigkeit der Staubkörner und damit vom Ort der Erde auf der Bahn um die Sonne, größer sein, als die geometrische Querschnittsfläche $\pi r_{\oplus}^2$, was in einer Berechnung des mittleren Flusses auf die Erdoberfläche berücksichtigt wird.
- Die Oberfläche $4\pi r_{\oplus}^2$, der Erde ist 4 mal so groß wie die geometrische Querschnittsfläche $\pi r_{\oplus}^2$ und ebenfalls größer als die effektive Querschnittsfläche A_{eff} . Der Fluss auf die Erdoberfläche ist damit kleiner, als der Fluss an der Erdquerschnittsfläche, was ebenfalls zu berücksichtigen ist.

Für das Modell, das nur den Anteil des Staubes berücksichtigt, der nahezu ungehindert in das Sonnensystem eindringt (wahrscheinlich mehr als die Hälfte des ISM-Staubes, siehe Abschnitt 2.3.3) werden die elektromagnetische Wirkung, die Wirkung des Sonnenwindes und des Strahlungsdruckes etc. vernachlässigt.

Abbildung 2.3 zeigt als Ergebnis des in Anhang B näher ausgeführten Modelles, eine Darstellung der möglichen Dichteverteilung $n(\gamma)$ der ISM im Sonnensystem relativ zur Dichte n_0 der ISM außerhalb des Sonnensystems und die mögliche Variation des Staubflusses $\phi(\gamma)$ auf die Erdoberfläche relativ zum Staubfluss ϕ_0 auf das Sonnensystem in Abhängigkeit vom Winkel γ , der den Ort der Erde auf ihrer Bahn um die Sonne beschreibt,.

Die ISM wurde aus der Richtung $\gamma = 0^\circ$ kommend angenommen, der Neigungswinkel ε der Ekliptik gegenüber der Bewegungsrichtung der mit 2.5° [GGM⁺94], die Geschwindigkeit der ISM gegenüber dem Sonnensystem mit 30 km/s [GGM⁺94] und die Geschwindigkeit der Erde um die Sonne mit 30 km/s.

Eine erhöhte Dichte zeigt sich aus den angegebenen Gründen auf der „Lee-Seite“ des Sonnensystems. Der Fluss ist ebenfalls in dieser Richtung erhöht

und asymmetrisch aufgrund der Bewegungsrichtung der Erde relativ zur Richtung der Staubflüsse: Für Winkel größer als 180° verlaufen die Bewegungsrichtung der Erde und die Bewegungsrichtung des Hauptanteils der Staubflüsse nahezu in entgegengesetzter Richtung. Dadurch ergibt sich ein erhöhter Fluss als für Winkel kleiner als 180° , wo sich Erde und Staubflüsse nahezu parallel bewegen.

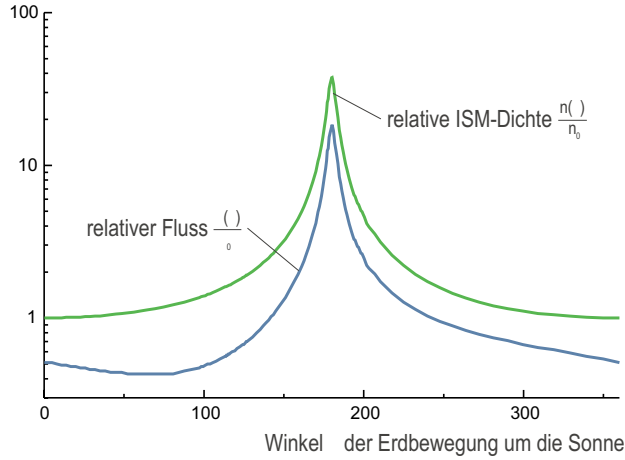


Abbildung 2.3: Darstellung der Dichteverteilung der ISM entlang der Erdbahn (Winkel γ) und des Staubflusses auf die Erdoberfläche entlang der Erdbahn. Die Dichte der ISM $n(\gamma)$ ist relativ zur Dichte der ISM n_0 ausserhalb des Sonnensystems angegeben, der Staubfluss $\phi(\gamma)$ relativ zum Staubfluss ϕ_0 ausserhalb des Sonnensystems. Die ISM wurde aus $\gamma = 0$ Grad kommend angenommen, der Neigungswinkel der Ekliptik gegenüber der Bewegungsrichtung der ISM mit 2.5 Grad, die Erdbahngeschwindigkeit mit 30 km/s und die Geschwindigkeit der ISM relativ zum Sonnensystem ebenfalls mit 30 km/s. Zu Einzelheiten des zugrunde liegenden Modelles siehe Anhang B.

Mittelt man den Fluss ϕ auf die Erdoberfläche über einen Jahreszyklus, so ist der Mittelwert $\bar{\phi}$ um einen Faktor $f^+ = \bar{\phi}/\phi_0 = 1.4$ größer, als der Fluss ϕ_0 auf das Sonnensystem. Berücksichtigt man aus der Diskussion von Abschnitt 2.3.3, dass wahrscheinlich etwas mehr als ein Drittel des interstellaren Staubes aus dem Sonnensystem herausgehalten wird (aufgrund der Magnetfelder im Interstellaren Raum, des Sonnenwindes etc.), der Rest jedoch ungehindert eindringt, so kann der Faktor f^+ ungefähr auf den Wert

$$f^+ = \frac{\bar{\phi}}{\phi_0} \approx 1 \quad (2.14)$$

korrigiert werden, so dass der Fluss ϕ_0 des interstellaren Staubes auf das Sonnensystem etwa dem mittleren Fluss $\bar{\phi}$ auf die Erdoberfläche entspricht.

2.5 Abschätzung des Flusses SN-erzeugter Radionuklide auf die Erdoberfläche

In diesem Abschnitt erfolgt unter Verwendung des Ergebnisses des vorhergehenden Abschnittes zuerst eine Abschätzung des kontinuierlichen Eintrages von SN-erzeugten Radionukliden auf die Erdoberfläche, unter der Annahme einer kontinuierlichen Anreicherung der ISM mit diesen Radionukliden durch SNe.

Im zweiten Teil des Abschnittes wird ein möglicher Puls der Radionuklide für den Durchgang des Sonnensystems durch eine SN-Stoßfront abgeschätzt.

2.5.1 Anreicherung der ISM mit langlebigen Radionukliden

SNe reichern mehr oder weniger kontinuierlich unsere Galaxis mit Radionukliden an. Durch den Zerfall werden die Radionuklide wiederum kontinuierlich abgereichert, so dass man im Mittel eine Gleichgewichtsdichte n_i eines Radionuklides i abschätzen kann, welches die mittlere Lebensdauer τ_i besitzt und im Mittel mit einer Anzahl von N_i Atomen je SN produziert wird. Die zeitliche Änderung der Dichte $d/dt n_i$ ist im Gleichgewichtsfall null und gegeben durch

$$\frac{d}{dt}n_i = N_i \cdot \Gamma_{SN} - \frac{1}{\tau_i}n_i = 0 \quad (2.15)$$

wobei $\Gamma_{SN} = (8 \pm 4) \cdot 10^{-8} \text{ pc}^{-3} \text{ Ma}^{-1}$ der SN-Rate aus Abschnitt 2.2.3 entspricht. Damit erhält man die mittlere Gleichgewichtsdichte des Nuklides i in der ISM:

$$n_i = \tau_i \cdot \Gamma_{SN} \cdot N_i \quad (2.16)$$

Hierbei ist anzumerken, dass das SN-Material für Zeiten, die geringer sind als die Mischungszeiträume, lokal auf den Bereich der SN-Wolke beschränkt ist und erst nach einer bestimmten Zeit (10 Ma) sich in eine weitere Umgebung (100 pc) verteilt hat, wie in Abschnitt 2.2.2 auf Seite 19 diskutiert

wird. Für Radionuklide, deren mittlere Lebensdauer kleiner oder gleich dem Mischungszeitraum der SN-Wolke mit der umgebenden ISM ist, kann die Gleichgewichtsdichte n_i zur Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalles mit einem Faktor $\exp(-\tau/\tau_i)$ korrigiert werden, mit τ als Zeitkonstante für die Durchmischung und τ_i als mittlere Lebensdauer des betrachteten Radionuklides, unter der Annahme, dass sich im Mittel nach der Zeit τ die Radionuklide mit der ISM vermischt haben. Damit ergibt sich:

$$n_i = \tau_i \cdot \Gamma_{SN} \cdot N_i \cdot \exp\left(-\frac{\tau}{\tau_i}\right) \quad (2.17)$$

Als Beispiel für eine mögliche Anreicherung ergeben sich die in Tabelle 2.6 angegebenen Werte, die unter Verwendung der r-Prozessausbeuten aus Tabelle 2.3 bestimmt wurden. Als Mischzeitraum τ wurden 10 Ma angenommen.

Nuklid	^{60}Fe	^{244}Pu	^{247}Cm
mittl. Lebensd. τ_i	2.16 Ma	115 Ma	22.5 Ma
Anzahl N_i in einer SN mit $20 M_\odot$	$2.2 \cdot 10^{50}$	$1.0 \cdot 10^{47}$ – $7.9 \cdot 10^{47}$	$8.2 \cdot 10^{45}$ – $3.3 \cdot 10^{46}$
Dichte n_i in ISM	$6 - 19 \text{ km}^{-3}$	$14 - 340 \text{ km}^{-3}$	$0.16 - 1.9 \text{ km}^{-3}$

Tabelle 2.6: Mittlere Anreicherung der Interstellaren Materie mit ^{60}Fe , ^{244}Pu und ^{247}Cm unter der Annahme einer kontinuierlichen Produktion durch SNe mit einer SN-Rate von $\Gamma_{SN} = (8 \pm 4) \cdot 10^{-8} \text{ pc}^{-3} \text{ Ma}^{-1}$ und den angegebenen Produktionsraten (Aus Tabelle 2.6)

2.5.2 Kontinuierlicher Eintrag aus der Interstellaren Materie

Mit dem Ergebnis der Abschätzung der Anreicherung der interstellaren Materie mit den SN-erzeugten Radionukliden ^{60}Fe , ^{244}Pu und ^{247}Cm im letzten Abschnitt und der Abschätzung des Faktors $f^+ \approx 1$, der das Verhältnis aus mittlerem Fluss auf die Erdoberfläche und Fluss auf das Sonnensystem darstellt (Abschnitt 2.4), ist der kontinuierliche Fluss $\bar{\phi}_i$ eines Radionuklids aus der ISM auf die Erdatmosphäre gegeben durch:

$$\bar{\phi}_i \approx 1 \cdot n_i \cdot v_\odot \quad (2.18)$$

mit n_i als Dichte des Radionuklides i in der ISM und $v_\odot$ als Geschwindigkeit des Sonnensystems in der ISM mit $v_\odot \approx 30 \text{ km/s}$ [GGM⁺94]. Mit den mittleren Dichten n_i der Radionuklide aus Tabelle 2.6 ergeben sich für die mittleren Flüsse $\bar{\phi}_i$ die Werte in Tabelle 2.7.

Nuklid i	^{60}Fe	^{244}Pu	^{247}Cm
Dichte n_i in $[\text{km}^{-3}]$	6-19	14-340	0.16-1.9
Fluss $\bar{\phi}_i$ in $[\text{cm}^{-2}\text{Ma}^{-1}]$	$0.6 - 1.8 \cdot 10^6$	$0.13 - 3.2 \cdot 10^7$	$0.15 - 1.8 \cdot 10^5$

Tabelle 2.7: Mittlere kontinuierliche Flüsse SN-produzierter Radionuklide auf die Eroberfläche.

2.5.3 Gepulster Eintrag beim Durchgang des Sonnensystems durch eine SN-Stoßfront

In diesem Abschnitt soll abgeschätzt werden, welcher Masse m_i eines Isotops i auf die Erde eingetragen werden kann, wenn diese die Schale einer SN-Stoßfront mit Radius r passiert. Es seien

M_i die Masse des Isotops i , welche von der SN ausgeworfen wird

ρ_i die Dichte des Isotops i in der ISM aus Anreicherung durch frühere SNe

dann beträgt die Masse $m_i(r)$ des Isotops i in der Stoßfront im Abstand r vom Explosionszentrum

$$m_i(r) = M_i + \frac{4}{3}\pi\rho_i r^3 \quad (2.19)$$

Die Massenbelegung $\sigma_i(r)$ des Isotops in der Stoßfrontoberfläche beträgt damit

$$\sigma_i(r) = \frac{m_i(r)}{4\pi r^2} = \frac{M_i}{4\pi} \cdot \frac{1}{r^2} + \frac{\rho_i}{3} \cdot r \quad (2.20)$$

Diese Massenbelegung wird das äußere Sonnensystem erreichen, jedoch muss der Masseneintrag auf die Erdoberfläche noch etwas modifiziert werden, dazu folgende Betrachtungen:

- Ein Faktor f^+ wird eingeführt, wie in Abschnitt 2.4 diskutiert, da aufgrund von Sonnenwind, Strahlungsdruck etc., vor allem leichte und niederenergetische Staubteilchen vom Eindringen in das Sonnensystem abgehalten werden, weiterhin aber ein erhöhter Fluss durch die Gravitationswirkung von Sonne und Erde gegeben ist. f^+ ist dabei von der Geschwindigkeit der expandierenden Stoßfront und somit von deren Radius abhängig. Es wird weiterhin angenommen, dass die Dauer für den Durchgang durch die Stoßfront viel mehr als einen Umlaufzyklus, also ein Jahr, in Anspruch nimmt.
- Die Eindringrichtung des Sonnensystems in die Stoßfront ist ebenfalls zu berücksichtigen. Bei schiefem Eindringen oder bei einem Streifen der Stoßfront am Rande kann mehr eingetragen werden, aufgrund des längeren Weges in der Stoßfront, als bei senkrechtem Eindringen in die Stoßfront, welches den kürzesten Weg ergibt. Letzteres geschieht auch bei sehr nahen SNe, wenn die Stoßfront mit hoher Geschwindigkeit (relativ zur Geschwindigkeit des Sonnensystems) über das Sonnensystem hinweggeht, also wenn $v_{\oplus} \ll v_{SN}$. Der Faktor, um den sich der Masseneintrag erhöht, sei mit $f^{\#}$ bezeichnet. Dieser Faktor beträgt für den Fall sehr langsamer, oder zum Stillstand gekommener Blasen, gemittelt über den gesamten Querschnitt einer Blase, $f^{\#} = 2$. Für Explosionswolken, die mit großer Geschwindigkeit über das Sonnensystem hinweggehen, ist $f^{\#} = 1$.
- Desweiteren ist eine Halbwertszeitkorrektur $\exp(-\frac{t(r)}{\tau_i})$ notwendig, mit $t(r)$ als dem Zeitraum, der zum Zeitpunkt des Durchgangs des Sonnensystems durch die Stoßfront seit der Explosion der SN vergangen ist.

Eine Änderung der Verhältnisse aufgrund einer nicht sphärischen Expansion der Stoßfront und eine Modifizierung durch nicht homogene Massenbelegung der Stoßfront wird hier vernachlässigt. Insgesamt wird die Gleichung 2.20 modifiziert zu

$$\sigma_i(r) = f^{\#} \cdot f^+ \cdot \left(\frac{M_i}{4\pi} \cdot \frac{1}{r^2} + \frac{\rho_i}{3} \cdot r \right) \exp\left(-\frac{t(r)}{\tau_i}\right) \quad (2.21)$$

In Abbildung 2.4 ist für ^{60}Fe , ^{244}Pu und ^{247}Cm der gepulste Masseneintrag auf die Erdoberfläche aus Gleichung 2.21 dargestellt. Verwendet wurden dazu die Ergebnisse aus Tabelle 2.6, für die beiden Aktiniden wurde jeweils der Mittelwert der angegebenen Ausbeuten und der Mittelwert der Dichte in der ISM verwendet. Die Korrekturfaktoren wurden für eine erste Abschätzung $f^+ = 1$ und $f^\# = 2$ gesetzt.

Anzumerken bleibt, dass der Vergleich zwischen der ^{60}Fe -Ausbeute aus der SN mit den Ausbeuten der beiden Aktiniden problematisch ist, da, wie bereits auf Abschnitt 2.2.1 auf Seite 17 angesprochen wurde, nicht genau angegeben werden kann, wie häufig und wo der r-Prozess auftritt. Aus diesem Grund wurde in Abbildung 2.4 zusätzlich der gepulste Masseneintrag für eine SN dargestellt, die kein eigenes ^{244}Pu und ^{247}Cm produziert, sondern beide Nuklide nur aus der ISM aufammelt (gestrichelte Linien).

Der ISM-Anteil der Radionuklide in der Stoßfront kann aus folgenden Gründen variieren:

- Bei sehr geringer Anreicherung ρ_i der ISM mit dem Radionuklid i wird die Masse M_i aus der SN-Hülle immer die Stoßfront dominieren und die Massenbelegung der Wolke nimmt mit steigendem Radius r der Explosionswolke mit r^{-2} ab. Dies ist vor allem bei Radionukliden mit kürzeren Lebensdauern τ_i wie ^{60}Fe vorstellbar. Die Abbildung 2.4 zeigt auch für ^{60}Fe ein Abnehmen der Flächenbelegung (in [Atomen/cm²]) mit anfangs r^{-2} . Das stärkere Absinken ab etwa 25 pc ist auf die Halbwertszeitkorrektur zurückzuführen.
- Bei einer höheren Anreicherung ρ_i der ISM, wie es z.B. bei längerlebigen Radionukliden wie ^{244}Pu vorstellbar ist, nimmt die Massenbelegung in der Stoßfront mit steigendem Radius der Explosionswolke zuerst mit r^{-2} ab, solange der Beitrag des Nuklids aus der ISM gering ist. Ab einem bestimmten Abstand kann der lineare Term in Gleichung 2.21 größer werden als der r^{-2} -Term, es dominiert der Anteil der ISM und die Massenbelegung nimmt ab diesem Abstand wieder zu, in weiteren Entfernungen linear. Die Massenbelegung besitzt damit eventuell ein Minimum. In der Abbildung 2.4 zeigt sich, dass die Flächenbelegung von ^{244}Pu ab etwa 40 pc wieder ansteigt, das ^{244}Pu in der Stoßfront

wird hier vom ISM-Anteil dominiert.

Flächenbelegung in [Atome/cm²]

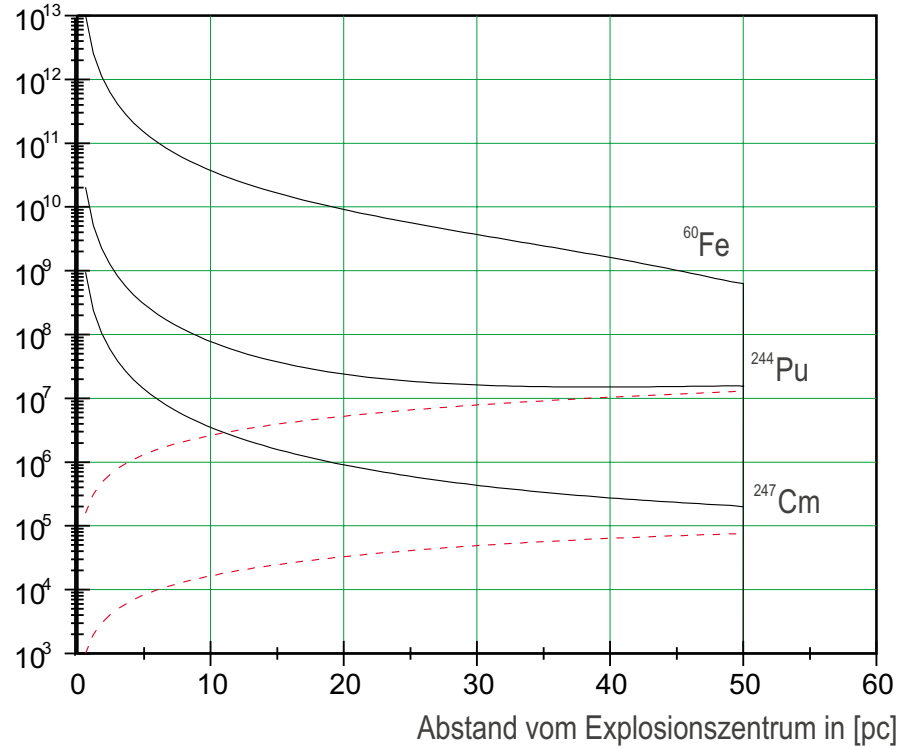


Abbildung 2.4: Gepulster Eintrag für ⁶⁰Fe, ²⁴⁴Pu und ²⁴⁷Cm aus einer SN mit Masse 20 M_⊙ (durchgezogene Linie). Das stärkere Absinken der ⁶⁰Fe-Kurve ab etwa 25 pc ist auf die Halbwertszeitkorrektur zurückzuführen. ²⁴⁴Pu-Kurve steigt am Ende wieder an, da die Explosionswolke durch ²⁴⁴Pu aus der ISM dominiert wird. Die gestrichelten Linien stellen den Anteil von ²⁴⁴Pu und ²⁴⁷Cm aus der ISM dar, bzw. die Massenbelegung für eine SN-Stoßfront, bei der angenommen wurde, dass kein r-Prozess mit ²⁴⁴Pu- und ²⁴⁷Cm-Produktion stattfand und beide Nuklide nur aus der ISM aufgefügt wurden.

2.6 Terrestrischer Transport: wieviel Material wird in die Archive eingebaut?

Nach dem Eintrag auf die Erdatmosphäre hängt die Höhe der Konzentration der Aktiniden in den Tiefseemangankrusten vor allem von drei Größen ab:

- Von der Effizienz des Transports in der Atmosphäre zur Erdoberfläche
- Von der Transporteffizienz im Ozean von der Wasseroberfläche zum Meeresgrund
- Von der Einbaueffizienz in die Mangankonkretionen

Für eine Beschreibung der Transport- und Einbaueffizienz kann teilweise auf Messungen von Aktiniden und anderen Radionukliden zurückgegriffen werden, die in Folge der oberirdischen und atmosphärischen Atombombentests der 50er und 60er Jahre in die Erdatmosphäre eingetragen wurden.

Zu Beginn dieses Abschnittes erfolgt zuerst eine Beschreibung der Eigenschaften von Mangankonkretionen in Bezug auf ihre Eignung als Archive für den Einbau von SN-produzierten Radionukliden, gefolgt von einer Beschreibung des Zusammenhangs zwischen der Konzentration der Radionuklide in den Krusten, dem Krustenwachstum und des Flusses auf die Erdoberfläche. Im weiteren Verlauf erfolgt eine Diskussion des atmosphärischen und ozeanischen Transportes anhand von Messungen von anthropogen produziertem Plutonium.

2.6.1 Mangankonkretionen als terrestrische Archive

Die wichtigste Anforderung an geologische Archive, um diese zum Nachweis von SN-produzierten Radionukliden verwenden zu können, ist ein sehr langsames Wachstum bei effizientem Einbau der betrachteten Nuklide, um eine Verdünnung möglichst gering zu halten und mit wenig Material große Zeiträume abdecken zu können. Diese Anforderungen werden zum Teil von den sogenannten Tiefseemangankonkretionen, also den Mangankrusten und Manganknollen, erfüllt.

Die Typen der Mangankonkretionen

Im Unterschied zu Sedimenten, deren Wachstum durch Sedimentation von Partikeln aus der Wassersäule erfolgt¹, geschieht das Wachstum der Krusten und Knollen durch Präzipitation, d.h. durch Fällung und Anlagerung von Metalloxiden, die sich im Meerwasser in Lösung befinden. Die Wachstumsraten können dabei, beeinflusst durch paläo-ozeanographische Einflüsse, einer Variation unterworfen sein.

Man unterscheidet drei Formen der Manganerze nach ihrer Genese [Bau93], wobei zwei dieser Formen als Archive für Messungen des interstellaren Materials in Frage kommen:

- **hydrogenetische Mangankrusten** werden durch Ausfällung von Metalloxiden direkt aus der Wassersäule über der Kruste gebildet. Diese Krusten sind, aufgrund der sehr geringen Wachstumsraten von etwa 1-6 mm pro Million Jahre sehr viel versprechend für eine Suche nach SN-erzeugten Radionukliden. Eine typische hydrogenetische Mangankruste bildet die untersuchte Mangankruste 237KD (Abschnitt 4.1.1). Sie enthält, schichtenabhängig, 20-30% Mn, $\leq 20\%$ Fe, $\leq 15\%$ Ca, $\leq 20\%$ Si, $\leq 5\%$ Al, $\leq 2\%$ Mn, $\leq 1.5\%$ K, $\leq 2\%$ Ti, 0.3-0.7% Ni, 0.2-0.5% Co, 0.2% Cu und weitere Spurenelemente.
- **Hydrothermale Mangankrusten** werden in der Nähe unterseeischer Vulkanaktivitäten gebildet. Das Wachstum der Krusten erfolgt hier vor allem durch Ausfällung von Metallen aus den heißen, hydrothermalen Lösungen, die durch Brüche und tektonische Klüfte unter der ozeanischen Kruste nach oben dringen. Diese Krusten besitzen weit höhere Wachstumsraten als hydrogenetische Mangankrusten und es wird vor allem Material aus dem Erdinneren an die Krusten angelagert [Jes91], was zu einer starken Verdünnung von angelagertem Material aus der Wassersäule führen kann. Daher sind sie als Archive für SN-Radionuklide weniger geeignet.

- **diagenetische Knollen** liegen auf oder knapp unter der Sediment-

¹Sedimente haben in der Regel sehr hohe Wachstumsraten von mindestens einigen mm in tausend Jahren. Daher sind sie für die Suche nach SN-erzeugten Radionukliden weniger geeignet.

oberfläche und remobilisieren Material aus dem Porenwasser des Sediments, bauen aber auch Material aus der Wassersäule ein. Vor allem bei Plutonium, das sich nach der Sedimentation zum Teil wieder im Wasser löst [LA83] und dadurch für einen Einbau in die Knolle zur Verfügung steht, kann dies zu einer Anreicherung des Plutoniums in der Knolle führen, wie eventuell die Messungen in Abschnitt 4.1 gezeigt haben. Aus diesem Grund bilden die diagenetischen Knollen ein vielversprechendes Archiv vor allem für Plutonium.

Aufgrund von Tiefenwasserströmungen, die eine entscheidende Rolle bei den Wachstumsprozessen der Mangankonkretionen spielen [Bau93], kann auch Material an die Mangankonkretionen aus Bereichen herangeführt werden, welche nicht direkt in der Wassersäule senkrecht über der Konkretion liegen. Dadurch besteht die Möglichkeit der Anreicherung von bestimmten Elementen bei hoher Affinität an Mangankonkretionen, d.h. die Konzentration von bestimmten Elementen in den Konkretionen könnte sogar größer sein, als die Flüsse dieser Elemente Richtung Ozeanboden in der Wassersäule senkrecht über den Konkretionen erwarten lassen.

Zusammenhang zwischen Konzentration, Krustenwachstum und Fluss auf die Erdoberfläche

Um aus einer Messung der Konzentration $c_i(h)$ eines Radionuklides i in einem Abstand h unter der Oberfläche einer Mangankonkretion den Fluss $j_i(t)$ des Nuklides auf die Erdoberfläche zu einem Zeitpunkt t in der Vergangenheit zu bestimmen, benötigt man den Zusammenhang aus $c_i(h)$, j_i , h , t und folgenden Größen:

α_i beschreibt die Einbau-Effizienz des Radionuklides i an der Oberfläche der Mangankonkretion, d.h. das Verhältnis der in die Kruste eingebauten Menge zur Menge die auf die Erdoberfläche eingetragen wurde. Eine tiefere Diskussion des atmosphärischen und des ozeanischen Transports, welcher durch diesen Parameter beschrieben wird, erfolgt in den beiden folgenden Abschnitten.

$\dot{h}(h)$ ist die Wachstumsrate der Kruste in [mm/Ma] im Abstand h von der Oberfläche

ρ_K	die Dichte der Mangankonkretion in [g/cm ³]
τ_i	die mittlere Lebensdauer des eingebauten Isotops i

Für die Konzentration $c_i(h)$ gilt:

$$c_i(h) = \alpha_i \frac{1}{\rho_K} \frac{j_i(t)}{\dot{h}(h)} \exp\left(-\frac{1}{\tau_i} \int_0^h \frac{1}{\dot{h}(h)} dh\right) \quad (2.22)$$

Wobei

$$t = \int_0^h \frac{1}{\dot{h}(h)} dh \quad (2.23)$$

das Alter t einer Schicht der Tiefe h unter der Oberfläche der Probe darstellt. Durch Messung der Konzentration $c_i(h)$ kann damit, unter Verwendung der Wachstumsrate $\dot{h}(h)$, aus den beiden Gleichungen der Fluss $j_i(t)$ auf die Erdoberfläche zu einem bestimmten Zeitpunkt t bestimmt werden.

Die Wachstumsrate kann bei Mangankonkretionen durch ¹⁰Be und ²³⁰Th-Datierung bestimmt werden. Die Einbaurrate α_i wurde für Plutonium bei Manganknollen und an einer Mangankruste explizit in einer Messung von Bombenplutonium ermittelt (siehe Abschnitt 4.1). Sie wird als zeitlich konstant angenommen.

2.6.2 Atmosphärischer Transport der Aktiniden

Durch die Bewegung unseres Sonnensystems nahezu parallel zur ekliptischen Ebene erfolgt der Eintrag von ISM auf die Erdoberfläche nicht isotrop. Am größten ist der Fluß im Bereich des Äquators und nimmt zu den Polen hin ab, außer bei sehr nahen SNe, deren Stoßfront die Erde z.B. senkrecht zur Bewegungsrichtung überstreichen kann und im Pol-Bereich der größte Eintrag zu erwarten ist.

Der größte Massenanteil der interstellaren Materie in Form von Staub und Mikrometeoriten, der die Erde erreicht hat, wird nach [Fly97] in der Erdatmosphäre nicht verglühen, sondern nur abgebremst werden und dann zur Erdoberfläche sedimentieren.

Nach [Sac96] dauert die Sedimentation der Staubkörner mit einem Durchmesser von 0.5 μm mehr als ein Jahr.

Durch die kontinuierliche Drehung der Erde ist anzunehmen, dass sich die einfallende ISM homogen jeweils über einen Breitengrad verteilt. Weiterhin betragen die Austauschzeiten zwischen den Breitengraden nur jeweils einige Wochen, daher ist anzunehmen, dass die ISM annähernd homogen über die ganze Erdoberfläche verteilt wird.

Speziell für den Transport von Plutonium in der Atmosphäre gibt es eine Beobachtung bei einem Satellitenunfall von 1964, als ein Satellit, der mit ca. 1 kg ^{238}Pu beladen war, auf der Südhalbkugel in der Atmosphäre verglüht ist [HKV73]. Aufgrund seiner seltenen Verwendung kann dieses Plutoniumisotop bei Nachweis auf der Erdoberfläche sehr gut dem Satellitenunfall zugewiesen werden. 1970 hatte bereits mehr als 95% des ^{238}Pu die Erdoberfläche erreicht und konnte an unterschiedlichen, über einen weiten Bereich der Erdoberfläche verteilten Messpunkten, nachgewiesen werden.

Ebenso kann Plutonium aus den oberirdischen und den atmosphärischen Kernwaffentests der 50er und 60er Jahre auf der gesamten Erdoberfläche relativ homogen nachgewiesen werden [LA83, BNLV80].

Im weiteren Verlauf wird angenommen, dass der atmosphärische Transport der betrachteten, SN-produzierten Radionuklide nur mit vernachlässigbaren Verlusten zur Erdoberfläche geschieht und dass die Verteilung nahezu isotrop über die Erdoberfläche erfolgt.

2.6.3 Ozeanischer Transport

Für eine Beschreibung des ozeanischen Transports kann wiederum auf Messungen von Plutonium in Wasser- und Sedimentproben zurückgegriffen werden, welche infolge der Kernwaffentests der 60er und 70er Jahre mit Plutonium kontaminiert wurden.

Im Pazifischen Ozean befand sich zur Zeit der Untersuchungen Anfang der 80er Jahre [LA83, BNLV80] ein Großteil des Plutoniums aus den Kernwaffentests noch in der Wassersäule in zwei Schichten in etwa 450 m und 1 000 m Tiefe. Aufgrund der hohen Partikelreaktivität¹ von Plutonium, d.h. auf-

¹Zu den Partikelreaktiven Elementen gehören z.B. Pa, Pb, Th, Am, Pu. Diese werden relativ schnell durch biologisches Material in die Tiefe transportiert. Zu den wenig Partikelreaktiven Elementen gehören z.B. Tc, Cs, U und Np. Letztere besitzen eine sehr hohe Löslichkeit in Wasser und haften kaum an Partikel.

grund seines Bestrebens, sich an festes Material im Wasser anzulagern, erfolgt der Transport des Plutoniums aus den oberen ozeanischen Schichten in den Tiefen-Ozean hauptsächlich durch Sedimentation mittels biologischer Partikel (z.B. Kotpillen und Phytoplankton), welche in den obersten Schichten und an der Oberfläche des Ozeans gebildet werden und dann in die Tiefe sedimentieren und dabei Plutonium anlagern [FCKH88, LA83]. Bei einer Messung des Plutoniums an sedimentierenden Teilchen in unterschiedlichen Wassertiefen zeigt sich nach [LA83], dass sich der Plutoniumfluss mit zunehmender Tiefe bis unterhalb der 1 000-m-Schicht erhöht und dann bis zum Meeresgrund in etwa 6 000 m Tiefe nahezu konstant bleibt. Die sedimentierenden Teilchen werden also in der Pu-reichen Schicht beladen und transportieren das Plutonium bis in den Tiefenozean.

Durch einen Vergleich des in die Wassersäule eingetragenen Plutoniums mit dem Fluss des Plutonium in Richtung Meeresboden ergibt sich eine mittlere Aufenthaltsdauer in der Wassersäule von 420-460 a [LA83].

Der relative Anteil des Plutoniums aus Kernwaffentests, der bereits den Meeresgrund erreicht hat, kann abgeschätzt werden durch den Vergleich einer Messung von Plutonium in Tiefseesedimenten mit der Menge des Plutoniums, das insgesamt in die darüberliegende Wassersäule eingetragen wurde. Nach [LA83] wurde in Bohrkernen von Tiefseesedimenten bei 30° N, 160° W in den Jahren 1974 bis 1978 eine Flächenaktivität von 129 d.p.m m⁻² (Zerfälle je Minute und m²) bestimmt. Die auf die Meeresoberfläche eingetragene Aktivität an dieser Stelle beträgt nach [BNLV80] 2.8 mCi km⁻² bzw. entsprechend 6 220 d.p.m m⁻². Folglich hatte Mitte der 70 er Jahre etwa 2.1% des Kernwaffenplutoniums den Meeresboden erreicht, unter der Annahme, dass dieses aus der Wassersäule vollständig in die Sedimente eingebaut wird. Diese Zahl wird in Abschnitt 4.1 zur Bestimmung der Einbaueffizienz von Plutonium in Mangankrusten benötigt.

Damit ist die Diskussion über die Entstehung und den Transport von SN-erzeugten Radionukliden abgeschlossen.

Das folgende Kapitel 3 diskutiert die experimentellen Verfahren, die zur Messung von Aktiniden aus SNe im Rahmen der Arbeit entwickelt wurden.

Kapitel 3

Messung von Aktiniden mit AMS

Der Aufbau dieses Kapitels entspricht im Wesentlichen dem Ablauf des Messverfahrens von Aktiniden mit AMS, welches im Rahmen der vorliegenden Arbeit am Münchner Tandem-Beschleuniger entwickelt wurde und in diesem Kapitel eingehend behandelt werden soll:

Nach einer kurzen Einführung über AMS mit Aktiniden im ersten Abschnitt erfolgt im zweiten Abschnitt die Beschreibung der chemischen Trennung des Plutoniums von den Matrixelementen in den Tiefseemangankrusten und die Herstellung der AMS-Proben.

Im dritten Abschnitt wird speziell auf die für die AMS wichtige Erzeugung von negativen Ionen in der Sputterionenquelle eingegangen und eine Optimierung der Ausbeuten durch den Resputterprozess erklärt.

Der vierte Abschnitt erläutert Aufbau und Funktionsweise der AMS-Messapparatur.

Im fünften Abschnitt wird anhand von Spektren aus Testmessungen die Leistungsfähigkeit der Anlage erläutert.

Im letzten Abschnitt werden die unterschiedlichen Methoden zur Messung von Spuren von Aktiniden bezüglich ihrer Nachweisgrenzen und der Aufwendigkeit ihrer Anwendung verglichen.

3.1 AMS: Einführung

3.1.1 Das Prinzip der AMS-Messung

In der AMS werden üblicherweise die Konzentrationen von Isotopen mit langen Halbwertszeiten in einer Matrix aus stabilen Isotopen des gleichen Elements gemessen, z.B. das bereits erwähnte ^{60}Fe gegenüber dem stabilen Isotop ^{56}Fe . Da aber Aktiniden keine stabilen Isotope besitzen, wird noch vor der chemischen Aufbereitung einer Probe eine definierte Menge eines Referenzisotops des gleichen Elements zugegeben, z.B. ^{236}Pu als Referenzisotop bei einer Messung von ^{244}Pu .

Bei der AMS-Messung werden in einer Cs-Sputterionenquelle (Funktionsweise siehe [Urb86]) negative Ionen oder Moleküle aus der Probe erzeugt und in einem Tandem-Beschleuniger auf hohe Energien beschleunigt. Zuerst durchlaufen die negativen Ionen einmal das Potential zur Mitte des Beschleunigers, werden dort zu positiven Ionen gestrippt und durchlaufen erneut das Beschleunigerpotential. Eine geeignete Anordnung aus elektrooptischen und magnetoptischen Komponenten auf der Niederenergie- und Hochenergieseite des Beschleunigers wirkt dabei als hochselektives Massensfilter, das die Ionen des gesuchten Isotops von Ionen anderer Nuklide trennt. In einem geeigneten Detektor werden die Ionen nachgewiesen und eventuell nochmals identifiziert.

Für eine Messung des gesuchten Isotops und des Referenzisotops müssen aufgrund der unterschiedlichen Massen die elektrische oder magnetische Steifigkeit der Anlagenkomponenten verändert werden.

Die unterschiedlichen Einstellungen des Massenspektrometers haben dabei eine unterschiedliche Transmission für die Ionen des Referenzisotops und des gesuchten Isotops zur Folge, welche beim Vergleich der Zählraten der beiden Isotope im Detektor berücksichtigt werden müssen.

Üblicherweise geschieht die Bestimmung der Transmission durch die Messung eines Eichstandards mit bekannter Konzentration des gesuchten Radionuklids in der stabilen Matrix, wobei die Zählrate des Radionuklids im Detektor mit dem negativen Ionenstrom eines der stabilen Isotope des gleichen Elements auf der Niederenergieseite des Beschleunigers verglichen wird.

Bei der Messung der Aktiniden wird die unterschiedliche Transmission zweier Isotope über eine Berechnung der unterschiedlichen Strippausbeuten und durch die Annahme eines geringen systematischen Fehlers für die Transmission durch die Strahlführungskomponenten der Anlage berücksichtigt. Eichquellen werden für die Aktiniden vor allem zum Einstellen der Anlage und zur Analyse der Spektren verwendet.

In der AMS wird meist nur ein sehr geringer Anteil der in der Probe gesuchten Atome gemessen und detektiert. Wenn aber, wie bei der Messung von SN-erzeugtem ^{244}Pu , eine hohe Nachweisempfindlichkeit angestrebt wird, müssen die Verluste minimiert werden. Welche Art von Verlusten bei der Messung von Aktiniden mittels AMS auftreten kann, wird im folgenden Abschnitt diskutiert.

3.1.2 Verluste bei der AMS-Messung

Verluste entstehen erstens bei der chemischen Aufbereitung der Probe, da die gesuchten Aktiniden nicht vollständig aus dem Probenmaterial extrahiert werden können. Angenommen wird hierbei, dass unterschiedliche Isotope des gleichen Elements sich chemisch identisch verhalten, zu messende Isotope und Tracer also die gleichen Ausbeuten besitzen. Im vorliegenden Fall wurden für Plutonium chemische Ausbeuten bis zu 80% erreicht (siehe Abschnitt 3.2).

Ein weiterer Verlust entsteht in der Sputterionenquelle: Es werden, abhängig von der Probenform, nur ein geringer Anteil der Probenatome als negative Ionen oder Moleküle aus der Probe extrahiert, bei Plutonium in Form von PuO^- aus einer Eisenoxidmatrix sind dies, bereits optimiert, etwa 0.6% des Gesamtplutoniums (Siehe Abschnitt 3.5.2). Der Rest des Probenmaterials geht hauptsächlich als Neutralteilchen verloren. Hier kann aber durch eine geeignet Probenform eine erhöhte Ausbeute von negativen Ionen erzielt werden (siehe Abschnitt 3.3). Für unterschiedliche Isotope des gleichen Elements wird wiederum angenommen, dass die Ausbeuten aus der Sputterionenquelle gleich sind.

Weitere Verluste entstehen im Tandembeschleuniger beim Strippen der Ionen in unterschiedliche, positive Ladungszustände zur Weiterbeschleunigung

(Typische Ausbeuten bei den Plutoniumisotopen sind etwa 15% für den Ladungszustand +11 bei einer Spannung von etwa 13 MV).

Schließlich ergeben sich Verluste im Strahlführungssystem des Beschleunigers von bei Plutonium typischerweise etwa 80%, wobei wiederum angenommen wird, dass sich zwei unterschiedliche Isotope im Rahmen eines gering angenommenen systematischen Fehlers annähernd gleich verhalten.

Bei einer Messung wird also letztendlich nur ein Bruchteil von etwa $1 \cdot 10^{-4}$ der Atome detektiert. Wenn nur eine sehr geringe Probenmenge vorhanden ist, wie bei der Messung von SN-erzeugtem ^{244}Pu , ist die Optimierung der Nachweisgrenze durch die Minimierung der Verluste in den einzelnen Schritten von großer Bedeutung, was verstärkt im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurde und in den folgenden Abschnitten diskutiert wird.

3.2 Die chemische Extraktion von Plutonium aus Tiefseemangankrusten

Um die Aktiniden einer Probe mittels AMS messen zu können, ist es notwendig, die Probenmatrix zu eliminieren und die Aktiniden folglich chemisch anzureichern. Anschließend wird die Probe in eine für die AMS verwendbare Form von Targethaltern verbracht.

Eine vollständige Methode zur chemischen Extraktion der Aktiniden wurde nur für Plutonium im Rahmen der Arbeit entwickelt. Im Folgenden wird der Schwerpunkt der Darstellung auf die Extraktion von Plutonium gelegt, wobei die chemische Extraktion der unterschiedlichen Aktiniden bis zur Säulenextraktionschromatographie parallel verläuft.

Die Beschreibung der Methode, die im Rahmen der Arbeit unter Mithilfe des Radiochemischen Instituts der TU München und des Radiochemischen Instituts der Argentinischen Atomenergiebehörde ARN entwickelt wurde, ist sehr detailliert erstellt, um die Handlungsabläufe einfach nachvollziehen zu können. Aufgrund seiner Wichtigkeit wurde dieser Abschnitt mit in den Hauptteil der Arbeit einbezogen. Für einen Überblick der Methode sei auf das grafische Schema in Abbildung 3.1 auf Seite 55 verwiesen.

Probenvorbereitung

Eine Probenmenge von etwa 100 g bis 1 kg Mangankruste oder Manganknollen wird zuerst vermessen (vor allem die Oberfläche ist wichtig, da sie die Fläche für den chemischen Einbau der gesuchten Isotope aus der Wassersäule darstellt) und gewogen und dann nur grob zu Stücken von etwa 1 cm Durchmesser zerkleinert. Ein Zermahlen zu Staub ist aufgrund ihrer guten Löslichkeit in Säure nicht notwendig und würde auch die Gefahr von Materialverlust erhöhen.

3.2.1 Auflösen der Proben, radioaktive Tracer

Die Probe wird in etwa 500 ml Aqua Regia, einer Mischung aus etwa 2/3 10n HCl und 1/3 10n HNO₃, je 200 g Probenmaterial unter Erhitzung aufgeschlossen. Die Dauer des AuflöSENS kann dabei 24 h oder mehr betragen.

Zu Beginn des Aufschließens wird ²³⁶Pu-Tracer zur Lösung gegeben. Der Tracer dient nicht nur als Referenzisotop bei der späteren AMS-Messung, sondern auch als radioaktiver Tracer zur Überprüfung der Effizienz der jeweiligen Extraktionsschritte.

²³⁶Pu wurde als Tracer aufgrund seiner kurzen Halbwertszeit von $T_{1/2} = 2.858$ a gewählt, um ein Referenzisotop zu besitzen, das in Bezug auf die Masse entsprechend weit vom gesuchten ²⁴⁴Pu entfernt ist und dessen Halbwertszeit klein ist, so dass nur eine geringe Menge des Tracers notwendig ist, um ihn mittels einer Flüssigszintillatormessung nachzuweisen. Vom Hersteller des Isotops¹ wurde eine hohe Isotopenreinheit garantiert, die durch eigene Messungen überprüft wurde. Bei einer Messung von ²³⁹Pu wurde eine Konzentration von $^{239}\text{Pu}/^{236}\text{Pu} = 2.2 \pm 0.4\%$ ermittelt. Aufgrund von Untergrundmessungen mit einer großen Menge des Tracers (siehe Abschnitt 3.5.3) kann weiterhin ein störender Anteil ²⁴⁴Pu vernachlässigt werden.

Die α -Aktivität der Probe wird nach den einzelnen Extraktionsschritten mittels Flüssigszintillatoren gemessen.

Um Verluste in der Probe gering zu halten, wird jeweils nur ein Anteil von etwa 1/300 bis 1/100 der gesamten Probenmenge für die Messung

¹Fa. Amersham Buchler GmbH/Braunschweig

verwendet.

Als ausreichende Tracermenge haben sich etwa 50 Bq erwiesen, was einer Menge von $6.4 \cdot 10^9$ Atomen ^{236}Pu entspricht. Diese Menge liegt weit über der Nachweisgrenze der AMS des Münchner Tandembeschleunigers und ist ausreichend, um Messungen mit geringem statistischen Fehler bezüglich des Tracers durchzuführen.

Nach dem Aufschluss der lösbaren Bestandteile wird der feste Rückstand abzentrifugiert, erneut mit Aqua Regia ausgekocht und wiederum abzentrifugiert und die überstehende, klare Lösung zur ersten gegeben. Der feste Rückstand (etwa 10-20% der ursprünglichen Probenmasse) besteht zum größten Teil aus in Aqua Regia unlöslichem SiO_2 . Auf ein Abrauchen des SiO_2 mit Flusssäure wie in [AF82] wird verzichtet, da Aktiniden in SiO_2 allgemein nur mit sehr geringer Wahrscheinlichkeit eingelagert werden [Ger99].

Die klare Lösung der Manganknollen wird bis annähernd zur Trockne eingengt und wieder in konz. HNO_3 aufgelöst, um die gelösten Salze als Nitrate zu erhalten.

3.2.2 Die Ca-Oxalat-Fällung

Im ersten Anreicherungs-schritt werden die Aktiniden als Oxalate mit Ca-Oxalat (CaC_2O_4) aus der Lösung ausgefällt. Dazu wird die Eigenschaft der Aktiniden ausgenutzt, dass deren Oxalatverbindungen in verdünnten Säuren unlöslich sind, im Gegensatz zum Großteil der Matrixelemente der Probe, die in der Lösung verbleiben. Die Ca-Oxalat-Fällung wird dabei 2-3 mal durchgeführt, wobei beim ersten Mal kein Ca-Träger zugegeben wird, da die Mangankrusten zu etwa 10-15% Calcium und andere Elemente enthalten, deren Oxalate unlöslich sind. Man erhält in diesem Schritt eine Reduktion der Matrix auf 10%. Die Ca-Oxalat-Fällung stellt den Flaschenhals der chemischen Extraktion dar; bei den ersten Messungen von Plutonium in Mangankrusten und Manganknollen (Kapitel 4) konnten nur unter Schwierigkeiten etwa 50% Ausbeute an Plutonium erreicht werden. Das unten angegebene Verfahren wurde zum Teil aus [Yam82, BK87, HIJ⁺87] übernommen und nachträglich mit Hilfe des Radiochemischen Labors der Argentinischen

Atomenergiebehörde Autoridad Regulatoria Nuclear für Mangankrusten optimiert, so dass damit Ausbeuten bis zu 80% erreicht werden können.

Ablauf der Fällung

Für die Ca-Oxalat-Fällung wird die Lösung je 100 g Probenmenge zuerst mit etwa 2000 ml deionisiertem Wasser verdünnt. Für den nächsten Schritt muss die Lösung schwach sauer sein (etwa 1 molar), daher ist eventuell etwas konz. HNO_3 der Lösung zuzuführen.

Je 1 g Eisen in der Lösung werden dann, unter kontinuierlichem Rühren und Erwärmen der Lösung auf 100°C , mindestens 10 g Oxalsäure zugegeben, bei einer 1000 g Probe/20 l Lösung entspricht dies etwa 2-3 kg Oxalsäure. Die große Menge an Oxalsäure wird benötigt, da das in den Manganknollen bis zu einem Anteil von 30% vorhandene Eisen einen löslichen Oxalatkomplex bildet [BK87], der gesättigt sein muss, bevor die unlöslichen Oxalate ausgefällt werden können.

Durch langsames Zuführen von NH_3OH -Lösung wird unter stetigem Rühren und Halten der Temperatur auf 100°C der pH-Wert auf pH 4 eingestellt. Die Lösung wird noch unter stetigem Rühren 3 h bei 100°C gehalten und dann abgekühlt. Die ausfallenden Oxalate sollen dann über einen Zeitraum 24 h absedimentieren.

Nach dem Absedimentieren werden Die Oxalate ausgefiltert oder abzentrifugiert, die klare Lösung wird wiederum leicht angesäuert, dann werden einige g Ca in Form von $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ aufgelöst und die Schritte zur Fällung von oben wiederholt, mit eventuell nur geringer Zugabe von Oxalsäure. Die Fällung wird insgesamt zwei bis drei Mal durchgeführt. Ca-Oxalat ist normalerweise weiß, eventuell besitzt die Probe aber einen leichten Farbstich (rosa) aufgrund anderer Oxalate.

Nachbehandlung der Oxalate

Das Ca-Oxalat aus allen Fällungen wird getrocknet und in einem Muffelofen bei 450°C mindestens zwei Tage lang oxidiert. Die Farbe des Ca-Oxalats wechselt dabei von weiß über grau bis fast schwarz, wieder zu hellgrau/weiß. Höhere Temperaturen sind zu vermeiden, da Plutonium eventuell in schwerlösliche Komplexe oxidiert werden kann.

Nach der Oxidation wird das CaO in HNO_3 gelöst, wobei meist ein schwarzer Niederschlag entsteht, welcher von zu Kohlenstoff zersetzten Oxalat herührt. Der Kohlenstoff wird oxidiert unter Zugabe von konz. H_2O_2 während Erhitzen auf 100°C , so dass man eine klare Lösung erhält. Die Lösung wird dann solange abwechselnd eingeeengt und wieder in H_2O_2 gelöst, bis die Entwicklung von braunem Gas (Stickoxide) beendet ist, da dieses immer noch das Vorhandensein von Oxalaten und Kohlenstoff anzeigt. Die Elimination des Kohlenstoffs auf diese Art und Weise ist wichtig, da der Kohlenstoff Plutonium adsorbieren kann.

Nach diesem Schritt ist es noch nicht möglich, die Effizienz der Anreicherung mittels eines Flüsszintillators zu messen, da bei der Ca-Oxalat-Fällung auch das in den Mangankrusten aus der Wassersäule sehr effektiv eingebaute ^{230}Th ($T_{1/2} = 7.54 \cdot 10^4 \text{ a}$) ausgefällt wird. Die spezifische Aktivität des ^{230}Th kann an der Oberfläche der Mangankrusten bis zu 50 Bq je Gramm Probenmaterial betragen [Bau93]. Bei der Flüsszintillatormessung können die Energien von ^{236}Pu und ^{230}Th nicht unterschieden werden, deshalb muss das ^{230}Th zuerst abgetrennt werden. Bei einer Probenmenge von ca. 800g der Manganknollen GBH 251 wurde nach dem ersten Schritt eine Aktivität von etwa 1500 Bq gemessen, der mit ausgefällte Anteil der anfänglich 80 Bq ^{236}Pu , welche als Tracer zugegeben wurden, können bei dieser Messung quantitativ nicht getrennt werden.

3.2.3 Die chemische Trennung der Aktiniden mittels Extraktionschromatographie

Im folgenden Abschnitt erfolgt die Beschreibung der Anreicherung von Plutonium mittels Extraktionschromatographie. Das prinzipielle Verfahren wurde aus [BH87, Wis59, HIJ⁺87, Sam63] zusammengestellt und für die eigenen Zwecke optimiert.

Zur weiteren Anreicherung von Plutonium wird eine Ionentauschersäule von ca. 100 ml Volumen mit dem organische Anionentauscherharz AG 1x8, 200 mesh, der Firma Eichrom verwendet. Der Anionentauscher wird zuerst mit etwa 5 Säulenvolumen (SV) H_2O gewaschen und dann mit drei SV 10 n HNO_3 konditioniert.

In der klaren Probenlösung v.o. werden 5 g NaNO_2 aufgelöst, um Plutonium

in die Oxidationszahl IV zu oxidieren und zu halten, da der Anionentauscher einen hohen Adsorptionskoeffizienten für Plutonium in diesem Zustand besitzt. Nach etwa 1 h Reaktionszeit wird die Lösung über die Säule gegeben. Die Durchflußrate wird so gewählt, dass die 600 ml Probe in etwa 5 h über die Säule laufen, um eine effektive Adsorption des Plutoniums zu gewährleisten. Ca wird vom Anionentauscherharz nicht adsorbiert und bleibt in der Ausgangslösung (1. Fraktion). Mit dem Ca verbleibt auch das Curium in Lösung. Bei einer geplanten Messung von ^{247}Cm oder ^{248}Cm muss die 1. Fraktion separat weiterverarbeitet werden. Plutonium und Thorium werden in der 10 n HNO_3 -Umgebung vom Anionentauscher adsorbiert.

Die Säule wird dann mit ca. 8 SV 10 n HNO_3 gewaschen, um Reste der Ca/Cm-Lösung abzuspielen, welche zur 1. Fraktion gegeben werden. Dann wird Thorium abgelöst mit ca. 3 SV 8 n HCl , in der etwa 2 g NaNO_2 gelöst ist (2. Fraktion), um ein Verbleiben des Plutonium im Oxidationszustand IV weiter zu gewährleisten. Das Plutonium wird nachfolgend abgelöst durch etwa 5 SV 8 n $\text{HCl} + 0.1$ n HI (3. Fraktion). Die Iodwasserstoffsäure reduziert Plutonium in den Oxidationszustand III, der von der Säule nicht adsorbiert wird.

Schließlich können noch die auf der Säule verbliebenen Matrixelemente, unter denen sich auch Uran befindet, durch 0.1 n HCl abgelöst werden (4. Fraktion). Plutonium wird bei diesem Schritt ca. 100 fach angereichert, die Matrix reduziert sich also von 80 g auf etwa 1 g. Die Matrix der Cm-Fraktion ist nur geringfügig reduziert. Durch die Abtrennung des Thoriums kann nach diesem Schritt das erste Mal die Effizienz der Plutonium-Anreicherung mittels Flüssigszintillator gemessen werden.

Anreicherung und Weiterverarbeitung des Plutoniums

Das Iod in der Plutoniumlösung (3. Fraktion) wird abgeraucht, die Lösung zur Trockne eingedunstet und in 10 n HNO_3 aufgenommen. Das Verfahren wird zweimal wiederholt, beim zweiten Mal die Lösung auf etwa 40 ml 10 n HNO_3 verdünnt und 0.5 g NaNO_2 zugeben. Das Verfahren von oben wird mit einem SV von ca. 15 ml wiederholt.

Im dritten Schritt wird eine Säule mit etwa 5 ml Volumen verwendet, die Lösung auf etwa 30 ml verdünnt und 0.2 g NaNO_2 zugeben.

Nach der dritten Säule sollte die Masse die Matrixelemente in der Plutonium-Lösung sehr viel kleiner als 1 mg sein, womit die chemische Extraktion für Plutonium abgeschlossen ist. Die einzelnen Schritte der Säulenchromatographie können mit den entsprechenden Lösungen auch mehrmals wiederholt werden, um höhere Ausbeuten zu erhalten. Die Säulensextraktionschromatographie ist aber eher unproblematisch, es konnten mit Testlösungen Ausbeuten bis zu fast 100% erreicht werden.

Zur Weiterverarbeitung werden zur Lösung des Plutonium etwa 0.05 mg in konz. HNO_3 gelöstes Eisen gegeben, die Lösung dann bis auf einen Tropfen eingengt, in HF verdünnt und auf einen Tropfen von ca. $3 \mu\text{l}$ (etwa 2 mm Durchmesser) eingengt.

3.2.4 Präparation der Sputterkathoden

Als Sputterkathoden für die Cs-Sputterionenquelle werden Targetträger aus hochreinem Graphit¹ verwendet, da die Massenzahl von Kohlenstoff sehr weit von den Massenzahlen der Aktiniden entfernt liegt und damit Untergrund durch das Targetträgermaterial vermieden werden kann. Weiterhin hat sich der Graphit als besonders sauber erwiesen haben (siehe unten, Untergrundmessungen) und es ist säureresistent (zum Eintropfen der sauren Probenlösung notwendig). Die Targetträger besitzen Löcher von 2 mm Tiefe und 2 mm Durchmesser, in welche das Probenmaterial gefüllt wird. Die Graphitoberfläche in den Löchern wird gepresst und geglättet, um eventuelle Poren zu dichten, damit beim späteren Eintropfen die Lösungen nicht in den Graphitporen versickern. Die Targetträger werden in Alkohol und anschließend dest. H_2O gereinigt und nachher mehrere Stunden im Vakuumofen getrocknet.

Mittels einer Pipette wird in das Loch in ca. 5 Hüben jeweils etwa $5 \mu\text{l}$ einer 100 mg/ml Fe-HF-Lösung eingetropft die nach jedem Tropfen unter einer Quarzlampe getrocknet wird, so dass man am Boden des Loches ein Bett von etwa. 2.5 mg Fe in Form einer weißen Schicht $\text{FeF}_3 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ erhält.

Auf diese Trägerschicht wird in 1-2 Hüben die Plutonium-Lösung mit Pipette aufgetropft und wiederum nach jedem Tropfen unter der Quarzlampe getrocknet. Das Eisenoxid in den Targetträgern wird dann als erstes im

¹Graphit „Puratronic“ der Fa. Alfa, Reinheitsgrad ca. 99.995%

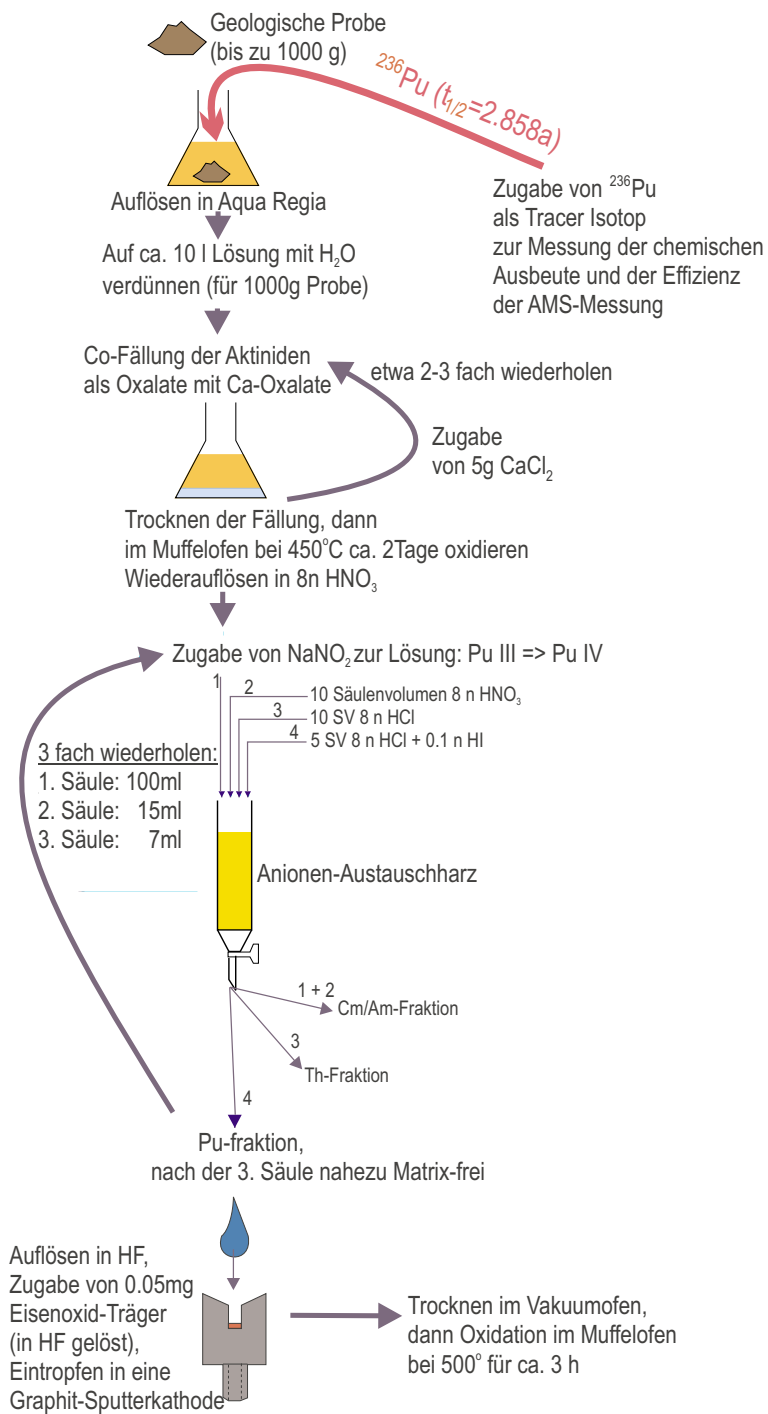


Abbildung 3.1: Schema der chemischen Extraktion von Aktiniden aus Mangankrusten

Vakuumofen bei ca. 100° einige Stunden lang getrocknet und dann im Muffelofen bei 500-550° für ca. 3-5h oxidiert. Höhere Temperaturen sollten vermieden werden, da Graphit sonst brüchig wird.

Dieses Verfahren des Eintropfens der Probenlösung in den Probenhalter besitzt die folgenden großen Vorteile für die AMS:

- Durch das Eintropfen können sehr kleine Probenmengen verarbeitet werden, die Matrixmenge der Probenlösung bei dem vorgestellten Verfahren beträgt nur ca. 0.1 mg.
- Durch die extreme Reduktion der Matrix wird auch möglicher Untergrund reduziert, der bei der Messung stören könnte.
- Durch die geringe Matrixmenge kann weiterhin die benötigte Messzeit der AMS reduziert werden, da insgesamt weniger Material aus dem Targetträger-Loch herausgesputtert werden muss.
- Die Deposition der Probe auf dem Boden eines Loches erhöht zusätzlich die Sputterausbeuten. Näheres dazu im folgenden Abschnitt 3.3.

Die beschriebene Methode der Herstellung von Sputterkathoden durch Eintropfen der Probenlösung wurde erstmals im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und mit großem Erfolg getestet und ermöglicht erst die Messung von ^{244}Pu unter den geforderten Bedingungen.

3.3 Erhöhte Ausbeute negativer Ionen durch Re-Sputtern

Die Deposition der Probe auf dem Boden eines Loches statt an der Oberfläche des Graphittargethalters bringt als zusätzlichen Vorteil eine höhere absolute Sputterausbeute an negativen Ionen durch einen Resputter-Prozess. Beim Sputtern durch die Cs-Ionen werden zum größten Teil neutrale Atome und neutrale Moleküle aus der Probenmatrix herausgeschlagen, die erwünschten negativen Ionen oder negativen Moleküle bilden dabei nur einen sehr kleinen Anteil, bei PuO^- aus einer Eisenoxidmatrix beträgt die Sputterausbeute (bereits optimiert) etwa 0.6%, bei CmO^- aus einer Eisenoxidmatrix etwa 1.4% (siehe Tabelle 3.3).

Sputtert man Teilchen am Boden eines Loches, so können Neutralteilchen, die aus der Probenoberfläche herausgesputtert wurden, nur in einem bestimmten Verlustkegel das Loch verlassen (siehe Abbildung 3.2). Mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit bleiben sie an der Wand des Loches hängen und stehen dort ein weiteres Mal für einen Sputterprozess mit möglicher negativer Ionen- oder Molekülbildung zur Verfügung.

In einem Test wurde in ein Loch eines Targethalters aus Graphit auf dessen Boden eine Schicht aus Goldspänen eingebracht. Aus der Probe wurde in einer Cs-Sputterionenquelle ein Strom von etwa $-1\text{ }\mu\text{A}$ negativer Au-Ionen extrahiert. Nach zwei Stunden war die Wand des Loches, gut sichtbar, homogen mit Gold bedeckt.

Der Resputterprozess kann sich mehrmals wiederholen, bevor das Teilchen

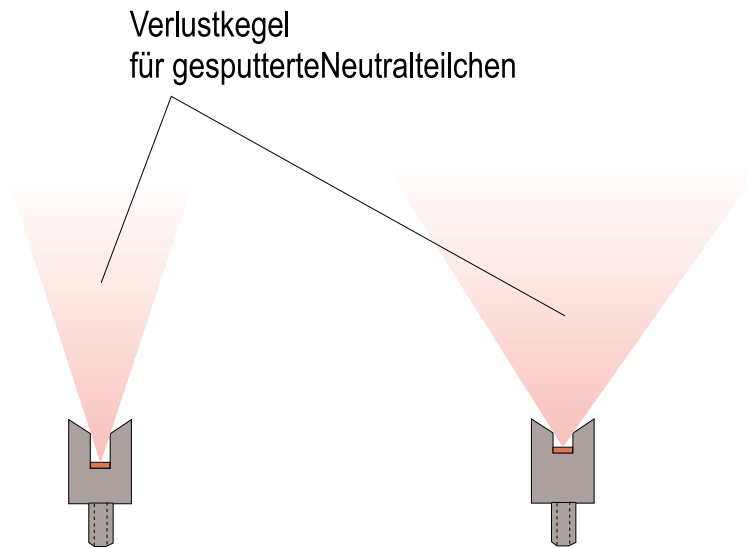


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung zum Resputter-Prozess. Der Verlustkegel für neutral gesputterte Teilchen ist im linken, tieferen Targetträger kleiner als im rechten Targetträger.

neutral oder negativ den Targethalter verlässt. Durch den kleineren Verlustkegel bei einem tiefen Loch erhöht sich die Wahrscheinlichkeit für die Bildung von negativen Ionen oder Moleküle im Vergleich zu einer flacheren Probe (siehe Abbildung 3.2).

Dieser Effekt ist gerade bei der AMS-Messung von Aktiniden sehr wünschenswert, da hier oft nur kleine absolute Probenmengen zur Verfügung

stehen und hohe Ausbeuten an negativen Ionen für einen Nachweis notwendig sind.

Für die vorgestellte Targethalterform wurden die Sputter-Ausbeuten für PuO^- und CmO^- in einer Messung explizit bestimmt (Tabelle 3.3). Die Ausbeuten liegen dabei etwa um einen Faktor 3 höher, als bei der Verwendung herkömmlicher Verfahren (siehe Abschnitt 3.5.2).

3.4 Aufbau der AMS-Anlage, Messprinzip

Die Sputtertargets, deren Herstellung im vorangegangenen Kapitel erläutert wurde, können direkt zur AMS-Messung verwendet werden, deren Beschreibung im folgenden Abschnitt im Detail erfolgt.

Der erste Unterabschnitt beschreibt den Gesamtaufbau der AMS-Anlage, im zweiten Unterabschnitt wird das Detektorsystem erklärt, im dritten Unterabschnitt das Prinzip der Signalverarbeitung und Datenaufnahme und im vierten Unterabschnitt werden die Vorteile der Münchner Anlage in Bezug auf die Messung von Aktiniden mit AMS erläutert.

3.4.1 Der Gesamtaufbau

Der Gesamtaufbau des Experiments ist schematisch in Abbildung 3.3 dargestellt. Die für das Verständnis des Messprinzips wichtigsten Komponenten der Anlage wurden eingezeichnet.

Zum Messverfahren: Auf der Niederenergieseite des Tandembeschleunigers werden in einer Cs-Sputter-Ionenquelle negative Ionen oder Moleküle, im Fall einer Plutonium-Messung negatives PuO^- , erzeugt und auf 25 keV beschleunigt. Mit einem Analysiermagneten (Massenselektivität von $\Delta m/m \approx 1/150$) und verschiedenen elektrostatischen Strahlführungselementen, unter anderem durch einen elektrostatischen 18°-Ablenker hoher Energietrennung, wird eine erste Selektion der negativen Ionen oder Moleküle getroffen.

Nach Durchlaufen einer Vorbeschleunigungsspannung von etwa 150 kV werden die Ionen/Moleküle dann in den Tandem eingeschossen und durchlaufen eine Spannung von ca. 13 MV.

Beim Durchgang der Ionen durch eine Kohlenstoffolie im Terminal des

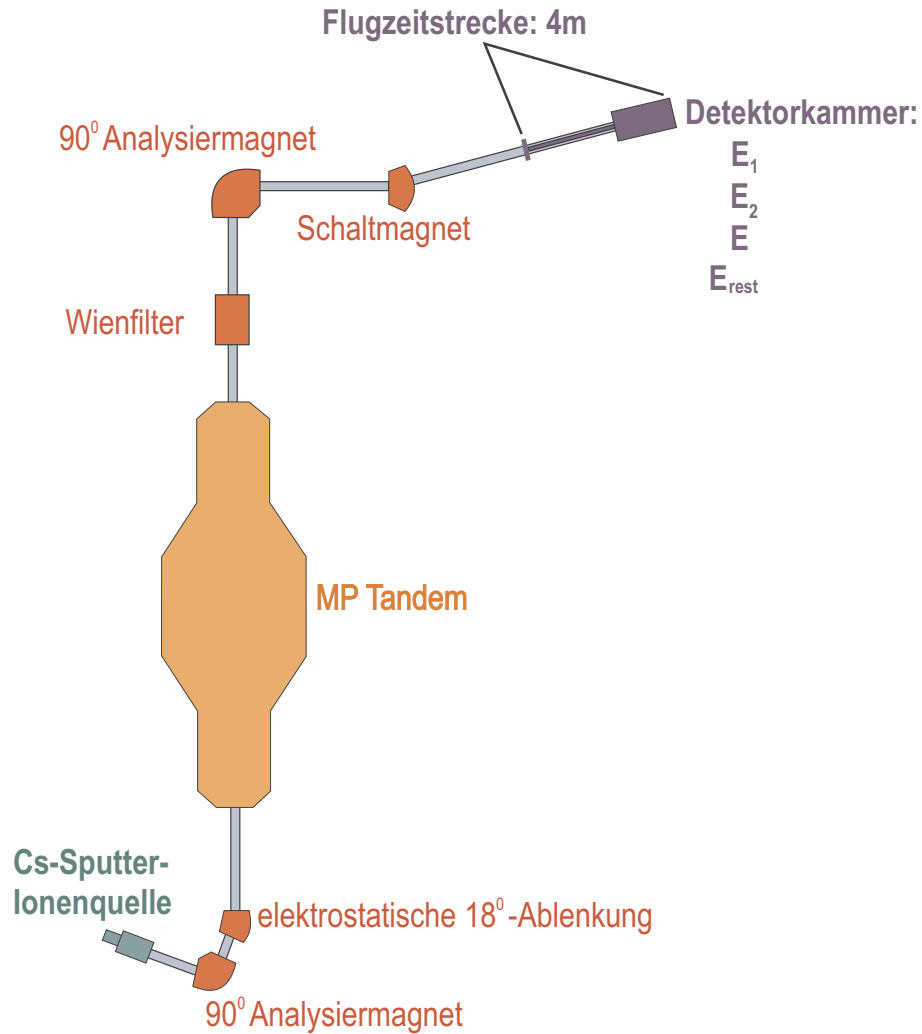


Abbildung 3.3: Gesamtaufbau der Messanlage. Eingezeichnet wurden die wichtigsten Elemente. Auf der Niederenergieseite erfolgt die Strahlführung, bis auf den 90°-Analysiermagnet, ausschließlich durch elektrostatische Komponenten. Beim Umschalten zwischen zwei Isotopen wird die Energie konstant gehalten (elektrische Steifigkeit) und nur das Magnetfeld verändert. Auf der Hochenergieseite erfolgt die Strahlführung, bis auf einen Wienfilter, durch magnetische Komponenten. Beim Umschalten zwischen zwei Isotopen wird auf der Hochenergieseite nur die Energie durch die Tandemspannung verändert, die magnetische Steifigkeit bleibt konstant.

Beschleunigers werden Molekülverbindungen aufgebrochen und Elektronen abgestreift. Die positiv geladenen Ionen durchlaufen erneut die Beschleunigungsspannung und verlassen den Beschleuniger auf der Hochenergieseite. Nach Passieren eines Wienfilters werden durch einen großen Analysiermagneten (Masse-Energieprodukt: 350 AMU) Ionen im Ladungszustand 11+ mit einer Energie von ca. 150 MeV ausgewählt und weiter durch einen Schaltmagneten in das -10° -Strahlrohr des Beschleunigerlaboratoriums eingeschossen. Am Ende des Strahlrohres befindet sich ein hochselektives, für die Messung von Aktiniden entwickeltes Detektorsystem, dessen Aufbau und Funktionsweise im folgenden Abschnitt im Detail erläutert wird.

3.4.2 Das Detektorsystem

Der Detektor besteht aus folgenden Komponenten:

- Eine Frischgitter-Ionisationskammer, zur Erzeugung von zwei Energieverlust-Signalen ΔE_1 und ΔE_2 auf deren Anode und einem Energieverlust-Signal ΔE auf dem Frischgitter, siehe dazu Abbildung 3.4 und die Beschreibung unten.
- Einem Oberflächen-Sperrschichtzähler zur Messung der Restenergie E_{rest} und zur Erzeugung eines schnellen Startsignals für die Flugzeitmessung, sowie eines Pile-Up-Signals für eine elektronische Pile-Up-Unterdrückung.
- Ein Channelplatedetektor zur Erzeugung eines schnellen Stoppsignales für eine Flugzeitmessung. Nähere Beschreibung des Channelplatedetektors siehe [Kni96].

Die Länge der Flugzeitstrecke beträgt etwa 4 m. Das zuerst erzeugte Signal des Channelplatedetektors wird gegenüber dem Signal des Oberflächen-Sperrschichtzählers verzögert, das als Startsignal dient. Dadurch werden nur die Ionen registriert, welche den Oberflächen-Sperrschichtzähler erreichen.

Insgesamt können je eintreffendes Ion fünf Signale gemessen werden. Als ausreichend haben sich die Messung von Flugzeit, ΔE und E_{rest} erwiesen, um Untergrund von echten Signalen zu unterscheiden, siehe dazu Abschnitt 3.5.3.

Die Detektorkammer

Die Frischgitter-Ionisationskammer, welche mit einem Sperrschichtzähler kombiniert ist, wurde speziell für die Messung von Aktiniden am Münchner Tandem neu entwickelt. Die Detektionslänge im Gas beträgt insgesamt 160 mm. Diese vergleichsweise große Länge ermöglicht die Verwendung eines niedrigen Gasdruckes von etwa 10 mbar Isobutan für einen Verlust von etwa $1/3$ der Gesamtenergie von 150 MeV, wobei sich diese Parameter bei Messungen als optimal erwiesen haben. Durch den niedrigen Druck kann bei einem Durchmesser des Eintrittsfensters von 20 mm eine dünne Eintrittsfolie mit $150 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ gewählt werden (alubeschichtete Mylarfolie). Durch eine dünne Eintrittsfolie werden Energieverluste in der Folie, die Vergrößerung der Strahldivergenz und die Verbreiterung der Energieverteilung reduziert.

Die Kammer wurde so konzipiert, dass die beiden Anodensegmente die Kam-

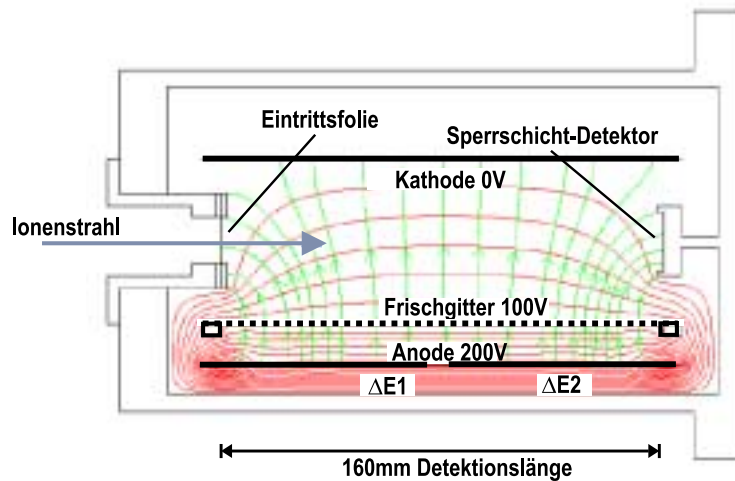


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Ionisationskammer mit Oberflächensperrschicht-Zähler mit berechneten elektrischen Feld- und Potentiallinien.

mer in zwei symmetrische Hälften teilen. Dadurch stehen die Feldlinien an der Trennungslinie der Anodensegmente senkrecht auf der Anode, wodurch potentialformende Elemente in der Kammer vermieden werden können, wie die berechneten Feld- und Potentiallinien in Abbildung 3.4 zeigen¹.

¹Die Berechnung der Feld- und Potentiallinien wurde mit dem Programm CSP „Charge-Simulation-Program“ des Beschleunigerlabors durchgeführt.

Das Eintrittsfenster und der Oberflächen-Sperrschicht-Zähler reichen ein Stück in den Feldbereich zwischen Kathode und Frischgitter, dadurch wird sichergestellt, dass alle durch die hochenergetischen Ionen im Detektorgas produzierten Elektronen/Ionenpaare abgesaugt werden können und die Elektronen durch das Frischgitter auf die Anode gelangen können, was durch die Berechnung der Feldlinien bestätigt wird.

Der Abstand zwischen Anode und Frischgitter beträgt 16 mm, zwischen Frischgitter und Kathode 70 mm. Für das Frischgitter wurden Goldbeschichtete Wolfram-Drähte mit 20 μm Durchmesser verwendet und in einem Abstand von etwa 1 mm angeordnet. Die Kathode ist über einen 100 M Ω -Widerstand geerdet. Bei einem Vergleich der Signalbreiten bei unterschiedlichen Frischgitter- und Anodenspannungen haben sich bei einem Gasdruck von 10 mbar Isobutan für das Frischgitter ein Potential von 100 V und für die Anode ein Potential von 200 V als optimal erwiesen.

3.4.3 Signalverarbeitung und Datenaufnahme

Die Verschaltung der Datenaufnahmeelektronik ist in Abbildung 3.5 dargestellt. Es steht für jedes Ereignis folgender Rohdatensatz zur Verfügung:

$\Delta E_1, \Delta E_2$	Energieverlustsignale der zwei Anodensegmente
ΔE	Energieverlustsignal des Frischgitters
E_{rest}	Energieverlustsignal des Halbleiterzähler
TOF	Flugzeit-Signal
PUP	Pile-Up-Signal

Das Mastergate wird über das E_{rest} -Signal abgenommen. Pile-Up-Signale werden aus Timing-Signalen des Halbleiterdetektors realisiert, wie ebenfalls in Abbildung 3.5 dargestellt. Dazu wird jedem Signal ein etwa 12 μs langes Gate zugewiesen. Das Signal selbst und das um etwa 0.1 μs gegenüber dem Signal verzögerte Gate werden mit einer elektronischen Koinzidenzschaltung logisch verknüpft und erzeugen im Fall einer Koinzidenz ein Signal, das den Rohdaten zugewiesen wird. Zwei Ereignisse in einem Abstand von 0.1 – 12 μs

CP:	μ -Channelplatedetektor
Delay:	Signalverzögerung (500 μ s)
ED:	Einkanaldiskriminator (TOF: Philips 704 mit 300 MHz, sonst: ED 1100)
GG:	Gate Generator (GG 1200)
HV:	Spektroskopieverstärker (Canberra 2012)
TFA:	Timing-Filter-Amplifier (Ortec 474)
VV:	Vorverstärker

3.4.4 Vorteile der Münchner Anlage

Die Beschleunigeranlage der TU und der LMU München besitzt einige hervorragende Eigenschaften, die eine höchst sensitive Messung von Aktiniden mit bester Untergrundunterdrückung erst ermöglichen:

- Die hohen Spannungen von etwa 13 MV ermöglichen eine Messung von mehreren Energieverlustsignalen mit geringer Streuung und erhöhen damit die Selektion verschiedener Massen und verbessern die Untergrundunterdrückung.
- Der große Analysiermagnet (Masse-Energieprodukt: 350 AMU) auf der Hochenergieseite des Beschleunigers, welcher eigens zum Zweck der Messung sehr schwerer Ionen installiert wurde, ermöglicht erst die Ablenkung von Aktiniden bei hohen kinetischen Energien und den beschriebenen Ladungszuständen, die für eine hohe Selektivität und eine hohe Unterdrückung des Untergrundes notwendig ist.
- Besonders zu erwähnen ist die durch ein neues Generating Voltmeter erreichte hohe Stabilität des Tandems von besser als 1 kV, entsprechend etwa 10^{-4} bei 13 MV, welche unabdingbar für hochsensitive AMS-Messungen ist [HRS99].
- Die hohen Energien, bei denen das Experiment aufgrund der ersten beiden Punkte betrieben werden kann, reduzieren die Aufweitung des Ionenstrahls beim Durchgang der Ionen durch Stripperfolien, durch die Folie des Channelplatedetektors und durch die Eintrittsfolie der Ionisationskammer und ebenso bei der Wechselwirkung der Ionen mit

dem Ionisationskammergas. Dadurch werden Verluste durch Streuung der Ionen reduziert und die Gesamttransmission der Anlage erhöht.

3.5 Test der Messmethode

In diesem Abschnitt werden Testmessungen diskutiert, die im Rahmen der Arbeit zur Ermittlung der optimalen Parameter der Anlage durchgeführt wurden.

Im ersten Unterabschnitt werden eindimensionale Testspektren der einzelnen Signale vorgestellt, um die Funktionsweise des Detektors zu verdeutlichen.

Im zweiten Unterabschnitt werden Ergebnisse von Messungen diskutiert, die in Bezug auf das Erreichen möglichst hoher negativer Molekülausbeuten durchgeführt wurden, unter anderem werden erstmals absolute Messungen der Molekülausbeuten von PuO^- , PuF_4^- und CmO^- vorgestellt.

Der dritte Unterabschnitt diskutiert die Unterdrückung von Untergrund anhand von Spektren aus Blankmessungen, wobei der Schwerpunkt hier auf Messungen von Untergrund bei Masse 244 gelegt wurde.

Im vierten Unterabschnitt werden die Spektren verschiedener Aktinidenisotope diskutiert.

3.5.1 Eindimensionale Testspektren

In Abbildung 3.6 sind für die Messung einer Eichprobe, die ^{244}Cm in einer Eisenoxidmatrix in einer Konzentration von $^{244}\text{Cm}/^{56}\text{Fe} = 4.3 \cdot 10^{-11}$ enthielt, das ΔE -Spektrum, das E_{rest} -Spektrum und das TOF-Spektrum für die Rohdaten (linke Spalte) und für gefilterte Daten (rechte Spalte) dargestellt. Ein Softwarefilter wurde dabei im ΔE -Spektrum auf ein Fenster von Kanal #1900 bis #2100 gelegt, wie in der Grafik angezeigt. Weiter wurde ein Softwarefilter auf die Ereignisse gesetzt (nicht bildlich dargestellt), die nicht mit einer Pile-Up-Signatur belegt sind, um Pile-Up-Signale auszufiltern.

Die Skalierung der Spektren ist willkürlich, wobei in den Energiespektren eine höhere Kanalnummer linear einer höheren Energie entspricht; ebenso entsprechen in den TOF-Spektren höheren Kanälen höhere Flugzeiten.

Die beiden Anodensignale $\Delta E1$ und $\Delta E2$ sind hier nicht dargestellt, da sie dem Frischgittersignal ΔE sehr ähnlich sind und einen ähnlichen Informa-

tionsgehalt wie ΔE besitzen. Außerdem ist die Messung der drei betrachteten Signale für eine Separation des Untergrundes ausreichend, optional stehen aber die beiden Anodensignale bei allen Messungen zur Verfügung.

Die Halbwertsbreite der Energieverlustsignale der Ionisationskammer ΔE , $\Delta E1$ und $\Delta E2$ beträgt etwa 3%, die Halbwertsbreite der Spektren des Halbleiterzählers E_{rest} beträgt etwa 4.5% und die Auflösung des Flugzeitsignales TOF entspricht etwa 500 ps. Dadurch lassen sich Isotope im Bereich einer Massenzahl von 240 gut separieren. In den Rohdatenspektren lassen sich verschiedene Nuklide identifizieren, die aufgrund ihrer magnetischen Steifigkeit und ihrer Geschwindigkeit durch die magnetischen und elektrischen Komponenten der Anlage nur bedingt unterdrückt werden können. Die Hauptkomponente des Untergrundes wird durch einen Anteil im Spektrum gebildet, welcher der Massenzahl 134 entspricht, wofür als einziges stabiles Isotop ^{134}Ba in Frage kommt (^{134}Xe ist zwar stabil, bildet aber keine negativen Ionen in der Ionenquelle). Eventuell lassen sich diese Ereignisse aber auch auf $^{133}\text{Cs}^{+6}$ zurückführen, dessen magnetische Steifigkeit nur um einige Promille von den Einstellungen abweicht und das in großen Mengen in der Sputterionenquelle vorhanden ist. Der ^{197}Au -Anteil im Spektrum lässt sich auf die Verwendung von Gold zurückführen, das zum Einstellen der Anlage verwendet wird. Der Ursprung der Ereignisse, welche der Massenzahl 110 entsprechen, ist unklar, als stabile Isotope kommen hier nur ^{110}Pd oder ^{110}Cd in Frage. Der Ursprung des ^{182}W -Anteils ist vermutlich der Wolframkern des Ta-Ionizers. In den Rohdatenspektren von E_{rest} und ΔE zeigen sich auch einige Pile-Up-Ereignisse, die sich aber durch das Software-Fenster gut separieren lassen, ebenso wie der Großteil des angesprochenen Untergrundes. Eine vertiefte Diskussion der Untergrundunterdrückung findet sich in Abschnitt 3.5.3.

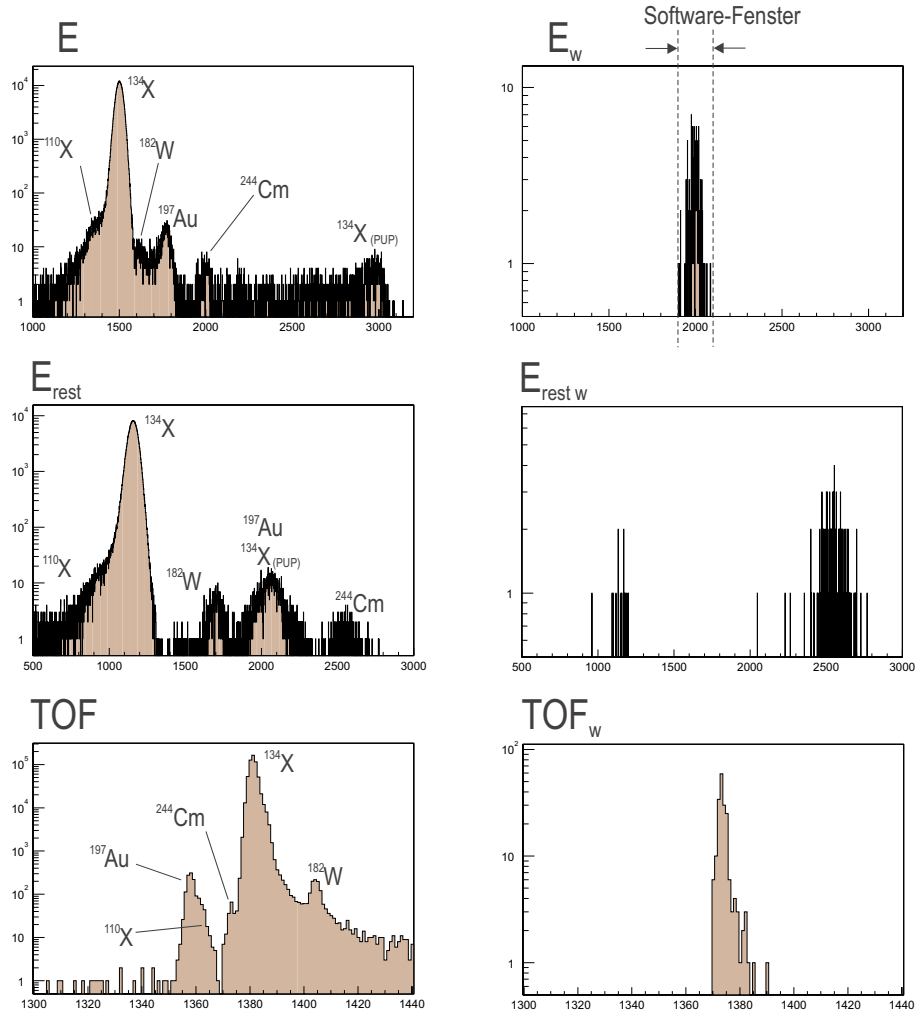


Abbildung 3.6: ΔE -Spektrum, E_{rest} -Spektrum und TOF-Spektrum für die Rohdaten (linke Spalte) der Messung einer ^{244}Cm -Eichquelle und für gefilterte Daten (rechte Spalte). Die Skalierung der Spektren ist dabei willkürlich. In den Spektren der linken Spalte wurde ein Softwarefilter auf ein Fenster im ΔE -Spektrum von Kanal #1900 bis #2100 gelegt, wie in der Grafik angezeigt. Nähere Erläuterungen siehe Text.

3.5.2 Ausbeute verschiedener negativer Moleklionen

Aufgrund der Erwartung geringer Konzentrationen von Plutonium und Curium in den Mangankrusten ist bei der AMS-Messung eine hohe Ausbeute negativer Moleklionen in der Cs-Sputter-Ionenquelle notwendig.

Zu diesem Zweck wurden erstmals die absoluten Ausbeuten von negativem Plutoniumfluorid und negativem Plutoniumoxid whrend einer AMS-Messung verglichen.

In anderen Anlagen wurden bereits die Ausbeuten von PuO^- , PuO_2^- , PuC^- , PuC_2^- und Pu^- gemessen [ZNKL94], wobei von den angegebenen Moleklen PuO^- die grte Ausbeute in einer Cs-Sputter-Ionenquelle besitzt.

Zur Erzeugung einer Plutonium-Fluorid-Probe wurde nach dem Schema aus Abschnitt 3.2.4 ein Probenhalter mit einer Konzentration von $1.7 \cdot 10^{-9} {}^{239}\text{Pu}$ gegenber ${}^{56}\text{Fe}$ in einer Eisenfluoridmatrix vorbereitet, der aber anstelle der Oxidation im Muffelofen nur im Vakuumofen getrocknet wurde, um Plutoniumfluorid in einer Eisenfluorid-Matrix zu erhalten.

Das Ergebnis der Messung der unterschiedlichen PuF_i^- -Zhlraten ist in Tabelle 3.1 angegeben, wobei PuF_4^- das am hufigsten produzierte negative Plutoniumfluorid-Molekl ist.

Molekl:	PuF^-	PuF_2^-	PuF_3^-	PuF_4^-	PuF_5^-	PuF_6^-
Anzahl Ereignisse	2	11	11	400	4	0
Zhlraten:	$0.3^{+0.4}_{-0.2}$	2.7 ± 1.0	2.2 ± 0.8	100 ± 20	$1.4^{+1.2}_{-0.7}$	< 1.7

Tabelle 3.1: Verhltnisse der Ausbeuten negativer Plutoniumfluorid-Ionen. Normiert auf die mittlere Zhlrate von PuF_4^- (entspricht 100%). Die angegebenen Abweichungen sind 1σ -Fehler. Neben dem statistischen Fehler wurde ein systematischer Fehler von 20% aufgrund von Schwankungen der Quellenleistung und aufgrund von Transmissionsunterschieden angenommen.

Zur Bestimmung der absoluten Ausbeuten wurden je eine ${}^{239}\text{Pu}$ -Oxid und eine ${}^{239}\text{Pu}$ -Fluorid-Probe zum grten Teil aufgebraucht und die ${}^{239}\text{Pu}$ -Ereignisse im Detektor gezhlt. Dabei wurden die Ergebnisse in Tabelle 3.5.2 erzielt.

Der aufgebrauchte Probenanteil wurde aus einer Extrapolation der Plutonium-Zhlrate am Ende der Messung bestimmt. Die Transmission im

	Anzahl	Verbraucht	Gemessen	Transm.	Sputterausbeute
PuO^-	$7 \cdot 10^7$	$\approx 70\%$	$4.7 \cdot 10^3$	0.017	0.56%
PuF_4^-	$7 \cdot 10^8$	$\approx 80\%$	$1.1 \cdot 10^3$	0.020	0.01%

Tabelle 3.2: Ergebnisse der Ausbeutemessung von negativ geladenen $^{239}\text{PuO}^-$ - und $^{239}\text{PuF}_4^-$ -Molekülen. Ein systematische Fehler von etwa 20% begründet sich hauptsächlich auf die Unsicherheit der Probenentleerung am Ende der Messung, welche aus einer Extrapolation der Zählraten ermittelt wurde.

Strahlführungssystem wurde jeweils durch die Messung der Transmissionsverluste eines ^{232}Th -Strahls bestimmt, und mittels der unterschiedlichen Stripausbeuten¹ auf die beiden Moleküle umgerechnet.

Die Sputterausbeuten von PuF_4^- sind um einen Faktor 50 geringer als die Ausbeuten von PuO^- . Ursache ist wahrscheinlich die im Vakuum schnell verdampfende Eisenfluorid-Matrix und ein damit verbundenes rasches Schwinden der Probe.

Absolute Sputterausbeuten von PuO^- aus Eisenoxid in herkömmlichen Targethaltern betragen aufgrund von Messungen aus [FCM⁺97] etwa 0.2%. Die Sputterausbeute aus dem Loch eines Graphittargethalters ist damit um fast einen Faktor 3 höher, was auf den Resputter-Prozess 3.3 zurückgeführt werden kann.

Unter Annahme einer Transmission von etwa 3% zwischen Ionenquelle und Detektor, die bisher im günstigsten Fall bei anderen Messungen erreicht wurde, beträgt die Plutonium-Nachweisgrenze etwa 6000 Atome.

Die Sputter-Ausbeute von CmO^- wurde durch die Messung einer Probe bestimmt, in der ^{244}Cm und ^{239}Pu in einem bestimmten Verhältnis enthalten waren. Ein Vergleich der Zählraten der beiden Nuklide ergab eine 2.5 ± 0.5 mal höhere Ausbeute für CmO^- -Moleküle im Vergleich zu PuO^- .

Umgerechnet ergeben sich für Curium damit die in Tabelle 3.3 angegebenen Sputterausbeuten und Nachweisgrenzen, im Vergleich zu Plutonium.

¹Stripausbeuten wurden mit dem Programm „BEAM“ des Beschleunigerlabors berechnet

Molekül	Sputterausbeute	Nachweisgrenze
PuO^-	0.56%	6000 Atome Pu
CmO^-	1.4%	2400 Atome Cm

Tabelle 3.3: Sputterausbeuten und Nachweisgrenzen von CmO^- und PuO^- an der Münchner AMS-Anlage, bei einer Transmission von 3%.

3.5.3 Messung von Untergrund bei Masse 244

In diesem Abschnitt werden Messungen von Blank-Proben bei Masse 244 mit dem nahen Bezug der Messung von SN-erzeugtem ^{244}Pu diskutiert. Vorangestellt sei, dass bei keiner Messung Untergrund im Bereich der Massenzahl 244 gemessen wurde. Dadurch kann Untergrund durch echte Masse-244-Ereignisse aufgrund von Übersprechen bei der Probenaufbereitung und in der Quelle im bisherigen Rahmen mit hoher Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden. Ebenso wird dadurch Untergrund durch gestreute Ionen, Pile-Up, Abweichungen durch die Messelektronik etc. vernachlässigbar.

Blankproben

Die verschiedenen Materialien, die in die Probe bei deren Herstellung mit eingehen, wurden einzeln oder in Kombination untereinander auf ihre Untergrundfreiheit überprüft. Die jeweiligen Messdauern entsprachen zum Teil der Messdauer einer echten Probe von etwa einem Tag.

Im einzelnen wurden der Graphit der Targethalter untersucht, der Fe_2O_3 -Träger¹ und insgesamt etwa 30 Bq des ^{236}Pu -Tracers (siehe Abschnitt 3.2.1), entsprechend ca. $4 \cdot 10^9$ ^{236}Pu . Kein Ereignis ^{244}Pu wurde gemessen, was einer Obergrenze von etwa $^{244}\text{Pu}/^{236}\text{Pu} < 5 \cdot 10^{-6}$ entspricht, im Rahmen eines Konfidenzniveaus von 68%.

Als Chemie-Blank wurde nach dem Extraktionsschema von Abschnitt 3.2 aus 40 g Calcium in Form von $\text{CaCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ² die Plutonium-Fraktion extrahiert, mit $3 \cdot 10^9$ ^{236}Pu -Tracer versehen und gemessen.

Weiter wurden bei der chemischen Aufbereitung der Mangankruste Proben aus den Nicht-Plutonium-Fractionen der letzten Extraktionschromatografie-

¹Fa. Alfa Aesar, Reinheit 99.999%

²Calciumchloriddihydrat p.A. der Fa. Merck

säule entnommen und auf ihre Reinheit bei Masse 244 untersucht, um Untergrund durch Nicht-Plutonium-Isotope ausschließen zu können.

Spektren

Die Effektivität der Separation von Untergrund durch die AMS-Anlage und den Detektor wird anhand der Spektren in der Abbildung 3.7 erläutert:

Im ersten Spektrum ist das zweidimensionale E_{rest}/TOF -Spektrum einer ^{244}Cm -Messung dargestellt, um den Bereich zu bestimmen, in dem $A=244$ Ereignisse nachgewiesen werden.

Im zweiten Spektrum in Abbildung 3.7 ist der gleiche Ausschnitt wie im ersten Spektrum für die Rohdaten einer Blankmessung dargestellt. In diesem Spektrum lassen sich als Untergrund, neben den bereits in Abschnitt 3.5.1 diskutierten Nukliden, weitere identifizieren: die Ereignisse im Bereich der Massenzahl 232 sind sehr wahrscheinlich ^{232}Th , das in den Proben im ppb-Bereich vorhanden sein kann. Der Ursprung der Ereignisse im Bereich von Masse 205 ist unklar, die Ereignisse im Bereich der Massenzahl 206 sind eventuell ^{206}Pb , deren Ursprung ist aber ebenso unklar.

Im dritten Spektrum wurde auf dieselbe Messung im ΔE -Spektrum (Frischgitter-Signal) eine $\pm 2\sigma$ -Fensterbedingung im Bereich der Massenzahl 244 gesetzt. Der größte Teil des Untergrundes wurde damit reduziert, der Masse 244-Bereich ist vollständig Untergrund-frei. Die dem Bereich der Massenzahl 244 am nächsten liegenden Ereignisse im Spektrum sind in E_{rest} -Richtung mindestens fünf Halbwertsbreiten vom Schwerpunkt des Bereichs der Massezahl 244 entfernt, in TOF-Richtung sogar mehr.

Alle weiteren Blankmessungen zeigen ähnliches Verhalten, es mussten nie restriktive Fensterbedingungen zur Abgrenzung von Untergrund gesetzt werden.

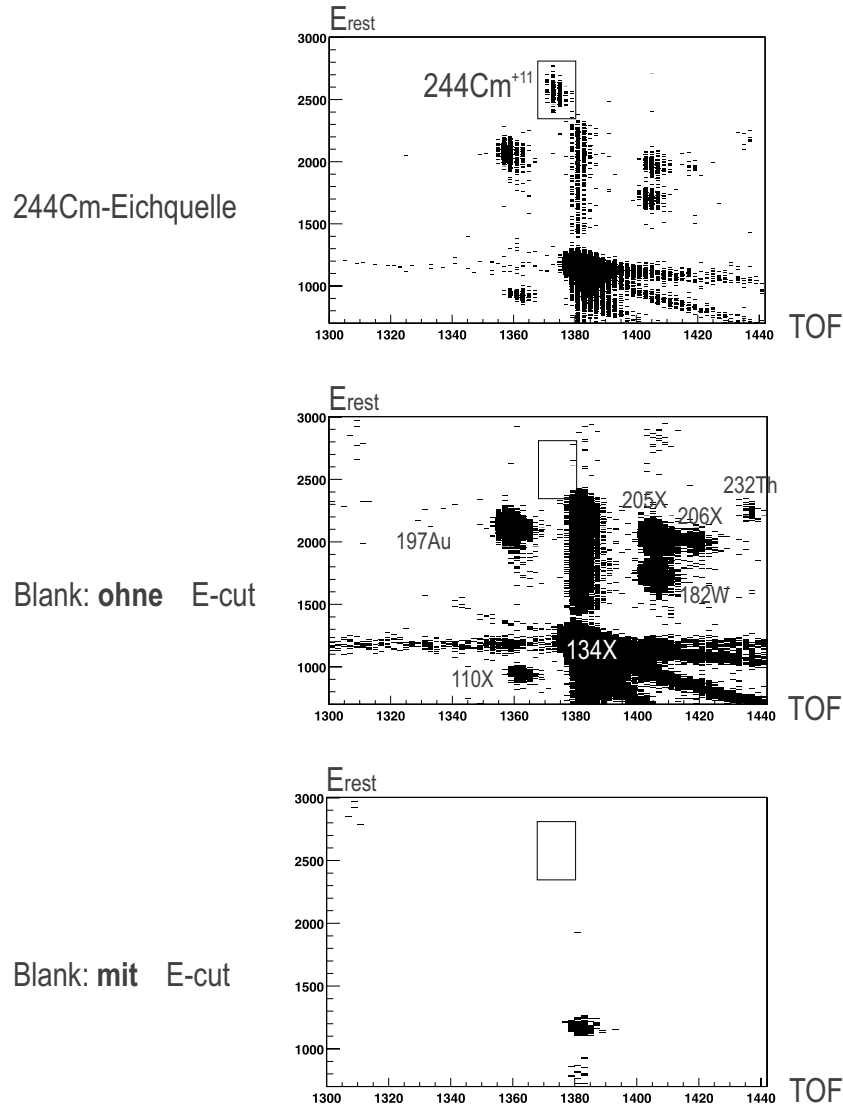


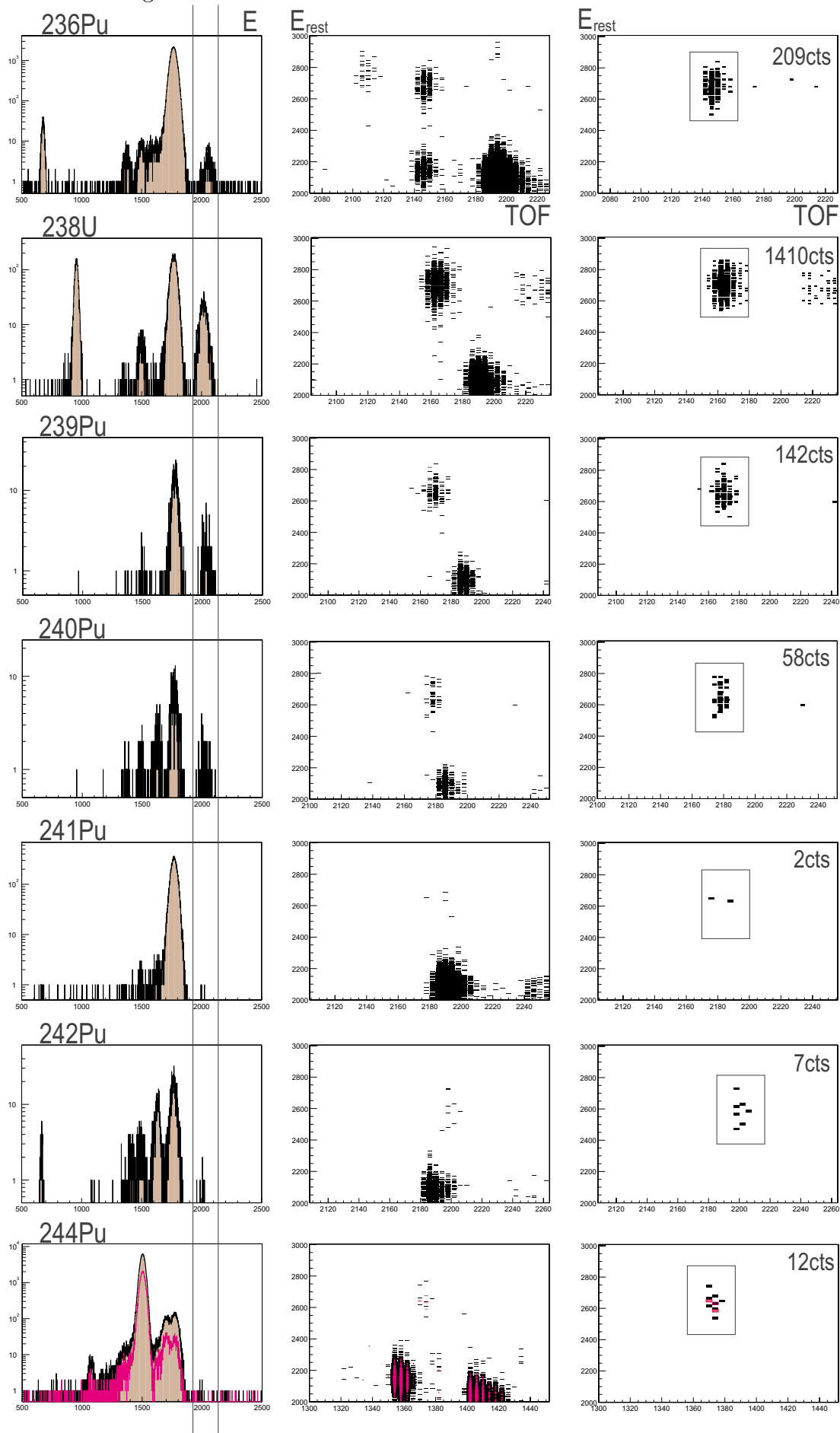
Abbildung 3.7: E_{rest} /TOF-Spektrum einer ^{244}Cm -Eichquelle im Vergleich mit dem Rohdaten-Spektrum einer Blankmessung und einem Spektrum derselben Messung mit gefilterten Daten. Die Fensterbedingung wurde dabei in der Energieverlustmessung ΔE (Frischgitter-Signal, hier nicht gezeigt) auf einen Bereich $\pm 2\sigma$ um den Schwerpunkt der Masse 244 gesetzt.

3.5.4 Spektren von Messungen verschiedener Aktinidenisotope von Masse 236 bis 244

In Abbildung 3.8 sind das ΔE - und TOF/E_{rest} -Spektren einer Messreihe der Plutoniumisotope ^{236}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Pu , ^{242}Pu und ^{244}Pu , sowie einer Messung von ^{238}U dargestellt, die im Rahmen der Messung von Aktiniden aus Kernwaffentests in Manganknollen durchgeführt wurden. Im Abschnitt 4.1.2 werden die Ergebnisse dieser Messungen im Detail behandelt, in diesem Abschnitt sollen die Spektren diskutiert werden. Gezeigt werden jeweils die eindimensionalen Spektren der Rohdaten von ΔE (linke Spalte) und zweidimensionale TOF/E_{rest} -Spektren, einmal in der mittleren Spalte für die Rohdaten und in der rechten Spalte für Daten, die einen Softwarefilter passiert haben, welcher durch die beiden senkrechten Geraden in den ΔE -Spektren symbolisiert wird.

Auffällig in diesen Spektren ist vor allem der unterschiedlich ausgeprägte Untergrund für die verschiedenen Plutonium-Isotope, der durch die unterschiedliche magnetische Steifigkeit zustande kommt. Die Messzeit für die verschiedenen Isotope lag immer bei ungefähr 300 s, was einen direkten Vergleich erlaubt. Zu den vermutlichen Untergrundisotopen siehe Abbildung 3.6 auf Seite 67.

Abbildung 3.8: Spektren von ^{238}U und von verschiedenen Plutoniumisotopen, Erläuterungen siehe Abschnitt 3.5.4



3.6 Andere Methoden zum Nachweis von Aktiniden, Vergleich zur AMS

Zu den wichtigsten Methoden zum spektrometrischen Nachweis von Aktiniden gehören Alpha-Spectrometry [KMS⁺95], RIMS: Resonance Ionisation Mass Spectrometry [HKP⁺94], TIMS: Thermal Ionisation Mass Spectrometry [BH87], ICP-MS: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry [MUT⁺99] und AMS.

- **Alpha-Spektrometrie:** Bei dieser Methode wird mit einem Halbleiterzähler die α -Zerfallsrate einer Probe gemessen.

Die Nachweisgrenze ist abhängig von der mittleren Lebensdauer der gesuchten Kerne und liegt in der Größenordnung von 0.5 mBq [KMS⁺95], entsprechend etwa $5 \cdot 10^8$ Atome ^{239}Pu oder $2 \cdot 10^{12}$ Atome ^{244}Pu .

Vorteile: Geringer technischer Aufwand, Einfachheit der Anwendung. Isobarentrennung möglich.

Nachteile: Die Messmethode ist bei kleinen Probenmengen sehr zeitaufwendig (Stunden bis Tage). Die Proben müssen hohen Anforderungen genügen: sie müssen sehr dünn sein, um eine Absorption der α -Energien gering zu halten. Bei den langlebigen Pu-Isotopen werden große Probenmengen benötigt. Außerdem lassen sich ^{239}Pu und ^{240}Pu aufgrund der ähnlichen α -Energien 5.16 MeV und 5.17 MeV nicht unterscheiden.

- **ICP-MS:** Die in flüssiger Form vorliegende Probe wird in einem Trägergas (Argon) zerstäubt und in einer Plasmaentladung (HF-generiert) bei einer Plasmatemperatur von etwa 5000°C ionisiert. Die Ionen treten durch ein Loch in der Plasmakammer in ein Quadrupol-Massenspektrometer ein und werden dort analysiert, Neutralteilchen werden über Vakuumpumpen abgesaugt.

Nachweisgrenze: etwa $5 \cdot 10^7$ Atome ^{239}Pu [MUT⁺99].

Vorteile: Einfache Handhabung, kostengünstige Instrumentierung. Kurze Messzeiten (Größenordnung Minuten). Molekularer Untergrund kann durch die Plasmaentladung sehr gut unterdrückt werden.

Nachteile: Keine Isobarentrennung möglich (Bsp. ^{244}Pu und ^{244}Cm),

muss bereits in der Chemie optimal geschehen. Geringe Nachweisgrenze im Vergleich zu AMS

- **TIMS:** Auf einem Filament werden aus der Probe durch thermische Ionisation Plutonium-Ionen erzeugt und mittels einem Massenspektrometer analysiert [BH87].
Nachweisgrenze: etwa $5 \cdot 10^5$ Atome ^{240}Pu .
Vorteile: Kleine Anlagen, kurze Messzeiten.
Nachteile: sehr hohe Probenreinheit wird verlangt, problematische Untergrundunterdrückung.
- **RIMS:** Die Probe wird in einem Atomstrahl durch das Licht dreier Farbstofflaser resonant angeregt und ionisiert. Die Ionen werden dann mit einem Reflektron-Flugzeitspektrometer massenselektiv nachgewiesen [HKP⁺94].
Nachweisgrenze: ca. $2 \cdot 10^6$ Atome Plutonium.
Vorteile: Durch die Laserresonanzionisation kann sehr elementspezifisch selektiert werden (Hohe Unterdrückung von molekularem und isobarem Untergrund). Kurze Messzeiten (Größenordnung Minuten-Stunde).
Nachteile: geringe Gesamtausbeute, kompliziertes Verfahren.
- **AMS:** Die Methode wurde bereits eingehend beschrieben. Mit einer Nachweisgrenze von weniger als $1 \cdot 10^4$ Atomen für Plutonium ist AMS die sensitivste Nachweismethode.
Nachteile: Sehr aufwendige Methode, teure Instrumentierung, kompliziertes Gesamtverfahren, hohe systematische Fehler durch instabile Anlage bei z.T. langen Messzeiten (mehrere Tage Gesamtmesszeit möglich).
Vorteile: Hohe Untergrundunterdrückung durch hochselektive Massenfiter bei hoher Energie. Effektive Unterdrückung von molekularem Untergrund durch effektives Aufbrechen der Moleküle im Strippergas oder in einer Stripperfolie. Einfache Handhabung der Probenherstellung und Ionenerzeugung. AMS ist unschlagbar für die Messung kleinster Probenmengen; ihre Nachweisgrenze für Aktiniden überragt, abhängig vom Isotop, die anderen Methoden um mehr als eine Größenordnung.

Kapitel 4

Experimentelle Ergebnisse

Im Rahmen dieser Arbeit wurden erstmals Messungen im Zusammenhang mit der Suche nach SN-erzeugtem ^{244}Pu in Mangankrusten durchgeführt.

Es wurde erstmals die Einbaueffizienz von Plutonium an der Oberfläche von Mangankrusten durch eine Messung von Plutonium aus den Bombentests der 50er und 60er Jahre bestimmt. Die Ergebnisse dieser Messungen werden im ersten Abschnitt dieses Kapitels behandelt.

Weiterhin wurde eine Messung zur Bestimmung der Wahrscheinlichkeit für ein Eindringen des Plutoniums in tiefere Schichten der Mangankruste durchgeführt, welche im zweiten Abschnitt diskutiert wird. Mit dieser Messung kann eine Interferenz des Bombenplutoniums bei Messungen des SN-produzierten Plutoniums in tieferen Schichten der Mangankruste mit großer Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden.

Eine erste Messung eines Ereignisses von SN-erzeugtem ^{244}Pu in einer Tiefseemangankruste aus dem Zentralpazifik wird im dritten Abschnitt beschrieben.

Im vierten Abschnitt erfolgt eine Diskussion des ^{244}Pu -Untergrundes aus verschiedenen Quellen, um mit hoher Wahrscheinlichkeit ausschließen zu können, dass das gemessene Ereignis aus einer Quelle stammt, die nicht dem r-Prozess einer jüngeren SN oder dem kontinuierlichen Eintrag aus der interstellaren Materie entspricht.

Im fünften Abschnitt erfolgt eine Diskussion über die mögliche Interpretation des Ergebnisses der ersten Messung von SN-erzeugtem ^{244}Pu .

4.1 Bestimmung der Einbaueffizienz von Plutonium in Mangankrusten mittels der Adsorption von Kernwaffen-Plutonium an der Krustenoberfläche

Ziel dieser Messung war die experimentelle Bestimmung der Einbaueffizienz des Plutoniums in Mangankongregationen, d.h. das Verhältnis α_{Pu} (vergleiche Abschnitt 2.6.1) der an den Mangankongregationen adsorbierten Plutoniummenge zur Menge des Plutoniums, das auf die Meeresoberfläche eingetragen wurde.

Zu diesem Zweck wurde erstmalig in einer hydrogenetischen Tiefseemangankruste und in diagenetischen Knollen Plutonium aus Kernwaffentests gemessen.

Die beiden Proben stammen aus dem zentralen Nordpazifik aus einer Tiefe von etwa 5000 m und befinden sich in nur einigen Kilometern Abstand voneinander entfernt. Damit ist ein direkter Vergleich der Affinität von Plutonium an diesen Mangankongregationen möglich.

Nachfolgend werden die Messergebnisse anhand der beiden Proben vorgestellt und diskutiert:

4.1.1 Hydrogenetische Tiefseemangankruste 237 KD

Daten der Kruste:

Die Mangankruste 237 KD stammt aus dem äquatorialen Pazifik bei $9^{\circ}18' \text{ N}$, $146^{\circ}03' \text{ W}$ aus einer Wassertiefe von 4830 m vom Gipfel eines untermeerischen Berges und wurde während der Fahrt VA13/2 des Forschungsschiffes „Valdavia“ im Jahr 1976 gewonnen. Sie wurde von v. Stackelberg beschrieben und untersucht [vS84] und von Mangini et. al. datiert [SMH⁺84]. Das Alter der ganzen Kruste umfasst dabei möglicherweise einen Zeitraum von 0 bis 60 Ma [FNHB99].

Von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffforschung wurde uns ein Stück dieser Kruste durch v. Stackelberg zur Verfügung gestellt. Das Krustenstück, besitzt eine Querschnittsfläche von etwa $21 \times 9 \text{ cm}^2$ und ist ca. 4-5 cm hoch. Die Höhe der Probe umfasst eine Zeitspanne von 0 bis ca.

15 Ma. Die Probe ist insgesamt 960 g schwer und wurde zur Stabilisierung in Caprol getränkt.

Messung des Plutoniums an der Krustenoberfläche:

Für die Messung des Oberflächenplutoniums wurde von etwa einem Viertel des Krustenstücks die oberste Schicht bis zu einer Tiefe von 2 mm entfernt. Die Fläche der entfernten Schicht betrug insgesamt 53 cm^2 , deren Masse ca. 17 g.

Die Schicht wurde nach dem Verfahren von Abschnitt 3.2 mit einer Tracermenge von $7.6 \cdot 10^8$ Atomen ^{236}Pu versehen, chemisch aufbereitet und mittels AMS gemessen.

Innerhalb eines Zeitraumes von insgesamt 5307 s wurden 21 Ereignisse des Referenzisotops ^{236}Pu gezählt, innerhalb eines Zeitraumes von 6352 s insgesamt 20 Ereignisse ^{239}Pu aus Kernwaffentests. Der systematische Fehler der Zählraten wurde dabei mit etwa 20% aufgrund von Schwankungen der Quellenleistung und Transmissionsunterschieden angenommen.

Aus dieser Messung ergibt sich eine Flächenbelegung mit ^{239}Pu von $(1.15 \pm 0.55) \cdot 10^7 \text{ cm}^{-2}$.

^{239}Pu -Bedeckung am Meeresboden im Jahr 1976

In Abschnitt 2.6.3 wurde der Anteil des Kernwaffenplutoniums, das Mitte der 70er Jahre den Meeresboden erreicht hat, mit etwa 2.1% bestimmt. An zwei zum Probenort nächstgelegenen Messstationen wurden nach [BNLV80] zwischen 1.6 mCi km^{-2} und 2.1 mCi km^{-2} auf die Meeresoberfläche eingetragen, im Mittel werden hier $(1.85 \pm 0.25) \text{ mCi km}^{-2}$ angenommen. Den Hauptanteil der Aktivität bilden dabei ^{239}Pu und ^{240}Pu . Nach den eigenen Messungen im folgenden Abschnitt 4.1.2 beträgt das Konzentrations-Verhältnis von ^{240}Pu und ^{239}Pu : $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0.25 \pm 0.05$. Daraus ergibt sich schließlich ein Eintrag von $(3.9 \pm 1.0) \cdot 10^9$ Atome $^{239}\text{Pu cm}^{-2}$ auf die Meeresoberfläche, wovon bereits 2.1% oder $(8.2 \pm 2.1) \cdot 10^7$ $^{239}\text{Pu cm}^{-2}$ den Meeresgrund erreicht haben.

Bestimmung der Einbaueffizienz α_{Pu} für die Mangankruste 237 KD

Ca. $(8.2 \pm 2.1) \cdot 10^7 {}^{239}\text{Pu cm}^{-2}$ hatten bis 1976 den Meeresgrund erreicht, $(1.15 \pm 0.55) \cdot 10^7 {}^{239}\text{Pu cm}^{-2}$ wurden an der Krustenoberfläche gemessen. Daraus ergibt sich eine Einbaueffizienz von $\alpha_{\text{Pu}} = (14 \pm 8)\%$.

4.1.2 Diagenetische Tiefseemanganknollen 251 GBH

Daten der diagenetischen Manganknollen:

Die diagenetischen Manganknollen 251 GBH stammen aus der Nähe der Mangankruste 237 KD im äquatorialen Pazifik bei $9^\circ 19.6' \text{N}$, $146^\circ 05.4' \text{W}$. Sie wurden während der Fahrt des Forschungsschiffes Sonne im Jahr 1982 gewonnen. Das Alter der Knollen umfasst wahrscheinlich einen Zeitraum von bis zu 15 Ma [vS99].

Die Knollen wurden ebenfalls von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffforschung zur Verfügung gestellt. Die Knollen besitzen Radien im Bereich von 0.5 cm bis 1 cm, ein mittlerer Radius von $(0.75 \pm 0.25) \text{ cm}$ wird im weiteren Verlauf der Diskussion angenommen. Die Trockendichte der Knollen beträgt etwa 1.5 g/cm^3 . Insgesamt stand eine Probenmenge von 857 g für eine Messung zur Verfügung. Die von den Knollen bedeckte Bodenfläche auf dem Meeresgrund betrug damit $(5.7 \pm 2.0) \cdot 10^2 \text{ cm}^2$.

Messung langlebiger Plutoniumisotope in den Manganknollen 251 GBH

Die Knollen wurden ebenfalls nach dem vorgestellten Schema chemisch aufbereitet. Mittels AMS wurden in einer Messung die Konzentration der Plutoniumisotope ${}^{239}\text{Pu}$, ${}^{240}\text{Pu}$, ${}^{241}\text{Pu}$, ${}^{242}\text{Pu}$ und ${}^{244}\text{Pu}$ aus Kernwaffentests bestimmt, wobei die Spektren dieser Messungen bereits in Abschnitt 3.5.4 diskutiert wurden. Es ergaben sich dabei die in Tabelle 4.1 angegebenen Konzentrationen der Isotope.

Plutonium aus Kernwaffentests entstand vor allem in den thermonuklearen Testexplosionen [Tau74, Gro65]. Um eine größere Sprengkraft zu erhalten, umgibt man thermonukleare Sprengkörper mit einem Mantel aus ${}^{238}\text{U}$, in dem die in der Fusion von Deuterium und Tritium erzeugten 14 MeV-

Pu-Isotop:	^{239}Pu	^{240}Pu	^{241}Pu	^{242}Pu	^{244}Pu
Anzahl:	142	58	2	7	12
Konzentration:	146 ± 19	36 ± 6	$1.5^{+2.0}_{-1.0}$	$3.8^{+2.1}_{-1.5}$	0.17 ± 0.05

Tabelle 4.1: Plutoniumkonzentrationen in einer 850 g-Probe der Manganknollen 251GBH (nähere Angaben siehe Text). Konzentrationen sind in 10^6 Atome/Gramm, die angegebenen Fehler sind 1σ -Fehler. Neben dem statistischen Fehler wurde ein systematischer Fehler von 10% aufgrund von Schwankungen der Quellenleistung und Unterschieden in der Transmission angenommen. Die gemessenen Isotopenverhältnisse sind typisch für Kernwaffentests, siehe dazu auch Abbildung 4.1.

Neutronen schnelle Spaltungen generieren. Parallel dazu kommt es aber auch zu mehrfachen Neutroneneinfang an ^{238}U durch hohe Flüsse thermalisierter Neutronen (1-10% des vorhandenen ^{238}U). Ähnlich wie im r-Prozess werden dabei schwere Uranisotope bis hin zu ^{255}U gebildet [Gro65, DH65, DFS+60, Tau74]. Durch nachfolgende β -Zerfälle entstehen aus den schweren Uranisotopen alle längerlebigen Plutoniumisotope oberhalb Masse 238, sowie weitere Transurane. Die in Tabelle 4.1 angegebenen Messergebnisse sind typisch für die Isotopenverteilung des Plutoniums nach einer thermonuklearen Explosion. Das Fehlen von ^{243}Pu ist auf dessen kurze Halbwertszeit von etwa 5 h zurückzuführen, dadurch ist es vollständig zu ^{243}Am zerfallen, welches bei der Extraktion chemisch abgetrennt und hier nicht gemessen wurde. Die gering erscheinende Menge ^{241}Pu ist ebenfalls durch dessen Halbwertszeit von 14.35 a bedingt: Zum Zeitpunkt der Messung der Proben im Februar 2000 waren etwa 2-3 Halbwertszeiten seit der Zeit der nuklearen Kernwaffentests vergangen.

In Abbildung 4.1 sind die Ergebnisse von Tabelle 4.1 noch einmal bildlich dargestellt. Darübergerlegt wurden typische Ausbeuten einer thermonuklearen Testexplosion aus [DFS+60]. Der Wert von ^{241}Pu der Tabelle wurde für die graphische Darstellung um 30 a zerfallskorrigiert. Die relativen Ausbeuten der Isotope in beiden Messungen stimmen dabei gut überein. In die Graphik wurde zusätzlich noch ein Messergebnis für ^{243}Am aus [DFS+60] mit aufgenommen.

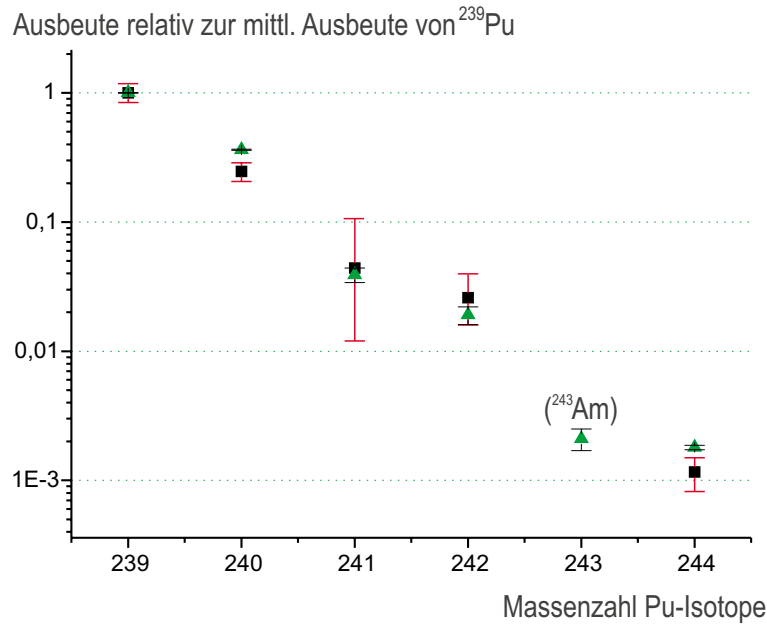


Abbildung 4.1: Graphische Darstellung (Quadrate) der relativen Ausbeuten verschiedener Plutoniumisotope aus der Messung der Mn-Knollen 251GBH aus Tabelle 4.1. Die Werte sind auf den Mittelwert von ^{239}Pu normiert, der Wert von ^{241}Pu wurde um 30 a zerfallskorrigiert. Darübergelegt wurden die gemessenen Werte [DFS⁺60] der Ausbeuten einer Kernwaffenexplosion aus den 60er Jahren (Dreiecke). Das Fehlen von ^{243}Pu ist auf dessen kurze Halbwertszeit von etwa 5 h zurückzuführen, stattdessen wurde in der Grafik ein Messwert für ^{243}Am (Zerfallsprodukt von ^{243}Pu) aus [DFS⁺60] verwendet, dessen relative Häufigkeit etwa der anfänglichen ^{243}Pu -Menge direkt nach der Explosion entspricht.

Gemessene ^{239}Pu -Oberflächendichte in den Manganknollen

Die von den Knollen bedeckte Fläche auf dem Meeresgrund wurde oben mit $(5.7 \pm 2.0) \cdot 10^2 \text{ cm}^2$ abgeschätzt. Die Gesamtmenge des in den Knollen gemessenen ^{239}Pu beläuft sich auf $(1.25 \pm 0.12) \cdot 10^{11}$ Atome ^{239}Pu . Daraus ergibt sich eine Oberflächendichte von $(2.2 \pm 0.8) \cdot 10^8 \text{ }^{239}\text{Pu cm}^{-2}$.

^{239}Pu -Bedeckung am Meeresboden im Jahr 1982

Zum Zeitpunkt der Probennahme der Manganknollen 251 GBH war seit der Probennahme der Mangankruste 237 KD ein Zeitraum von $t = 6$ a vergangen. Es ist davon auszugehen, dass innerhalb dieses Zeitraumes

weitere Mengen Plutonium aus den oberen Schichten des Pazifiks in den Tiefenozean gelangt sind, wo sie für einen Einbau in die Manganknollen zur Verfügung standen.

Mit der mittleren Verweilzeit des Plutoniums im Meer von etwa $\tau_v = 440$ a (siehe Abschnitt 2.6.3) wurde innerhalb von 6 a zusätzlich ein Anteil $(1 - \exp(-t/\tau_v)) = 1.4\%$ des in der Wassersäule gelösten Plutoniums in den Tiefenozean abtransportiert, insgesamt erreichten also bis 1982 $2.1\% + 1.4\% = 3.5\%$ des Plutoniums den Meeresgrund, entsprechend $(1.4 \pm 0.4) \cdot 10^8 \text{ }^{239}\text{Pu cm}^{-2}$.

Bestimmung der Einbaueffizienz α_{Pu} für die Manganknollen 251 GBH

Etwa $(1.4 \pm 0.4) \cdot 10^8 \text{ }^{239}\text{Pu cm}^{-2}$ hatten bis 1982 den Meeresgrund erreicht, $(2.2 \pm 0.8) \cdot 10^8 \text{ }^{239}\text{Pu cm}^{-2}$ wurden an den Manganknollen gemessen. Daraus ergibt sich eine Einbaueffizienz von $\alpha_{\text{Pu}} = (160 \pm 70)\%$. Die Knollen reichern also möglicherweise Plutonium an.

4.1.3 Vergleich der Manganknollen 251 GBH mit der Mangankruste 237 KD

Die gemessene Effizienz für den Einbau von Plutonium in die diagenetischen Manganknollen 251 GBH ist etwa 10 mal so groß, wie die Effizienz für den Einbau von Plutonium in die hydrogenetische Mangankruste 237 KD. Dieser Unterschied kann eventuell durch zwei Ursachen erklärt werden:

- Die Knollen besitzen aufgrund ihrer (näherungsweisen) Kugelform, im Verhältnis zu ihrem Volumen, eine größere Oberfläche als die Mangankrusten, ebenso ist die Oberfläche der Knollen 4 mal so groß, wie die von ihnen bedeckte Bodenfläche. Durch bodennahe Meeresströmungen werden sie effektiver umspült und können somit mehr Plutonium adsorbieren, als die Krusten.
- Die Knollen bilden keine geschlossene Oberfläche auf dem Sediment, sondern bedecken nur etwa 1/10 der Fläche des Meeresgrundes.

Möglicherweise reichern die Knollen zusätzliches Plutonium an, das aus den umliegenden Sedimenten in das bodennahe Meerwasser remobilisiert wird.

Aufgrund der hohen Effektivität der diagenetischen Manganknollen, Plutonium anzulagern, erscheinen sie für Messungen von SN-erzeugtem ^{244}Pu sehr vielversprechend.

4.2 Eindringtiefe des Plutonium in Mangankrusten

Aus der Messung des Plutoniums aus Kernwaffentests in den Manganknollen 251 GBH zeigt sich, dass zum Zeitpunkt der Probennahme im Pazifik bereits so große Mengen Plutonium die Mangankrusten erreicht haben, dass sogar ^{244}Pu nachgewiesen werden konnte. Um störenden Untergrund bei einer Messung von SN-erzeugtem ^{244}Pu auszuschließen, muss eine Diffusion des Plutoniums in die Kruste, z.B. über Porenwasser, aber vernachlässigt werden können, so dass es für eine Messung genügt, einen Teil der Krustenoberfläche abzunehmen. Zwei bereits untersuchte Beispiele [NBFM99] für die unterschiedliche Mobilität von Spurenelementen in Mangankrusten bilden hier wiederum Thorium und Uran. Während Thorium aufgrund seiner Partikel-Reaktivität sehr fest in Mangankrusten eingebaut wird und im Porenwasser kaum mehr gelöst werden kann, resorbiert das wenig Partikelreaktive Uran sehr leicht im Porenwasser der Krusten und kann von der Oberfläche leicht in tiefere Schichten diffundieren¹.

Zur Bestimmung einer oberen Grenze für das Eindringen von Plutonium in tiefere Schichten der Kruste wurde eine Schicht von etwa 53 cm² Querschnitt in einer Tiefe von etwa 2-4 mm unterhalb der Krustenoberfläche auf den Gehalt von Kernwaffen-Plutonium untersucht. Die Probenmenge von etwa 15 g wurde mit $9.4 \cdot 10^7$ Atomen des Referenzisotops ^{236}Pu versehen und nach der in Abschnitt 3.2 beschriebenen Methode chemisch angereichert und mittels AMS gemessen.

¹Aus diesem Grund ist ^{230}Th für eine sehr sensitive Datierung von Schichten der Mangankrusten geeignet, die nur einen Bruchteil eines mm dick sind. Eine Datierung über das $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnis ist, wenn überhaupt, nur bedingt möglich [NBFM99]

Während der Messung von ^{236}Pu wurden in einem Zeitraum von 3940 s insgesamt 26 Ereignisse gezählt, während der Messung von ^{239}Pu wurde innerhalb 3469 s kein Ereignis beobachtet. Als systematischer Fehler der Zählraten werden wiederum 20% angenommen. Die Flächenbelegung dieser zweiten Schicht der Kruste ist folglich maximal $1.5 \cdot 10^5 \text{ }^{239}\text{Pu cm}^{-2}$, bei einem Konfidenzniveau von 68%.

Mit dem Verhältnis $^{244}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = (1.16 \pm 0.36) \cdot 10^{-3}$ von oben (Abschnitt 4.1.1) ergibt sich eine obere Grenze für die Flächenbelegung dieser zweiten Schicht mit Kernwaffen- ^{244}Pu von $190 \text{ }^{244}\text{Pu cm}^{-2}$, mit einem Konfidenzniveau von 68%.

Aufgrund der Partikel-Reaktivität von Plutonium kann aber erwartet werden, dass dessen Mobilität in den Krusten noch geringer ist, als in dieser ersten Messung als Obergrenze abgeschätzt wurde und sich dadurch das Risiko für störenden Untergrund noch weiter reduziert. Diffusion größerer Mengen in noch tiefere Schichten kann aufgrund der Messung unterhalb der Oberfläche vernachlässigt werden, deshalb wird angenommen, dass die Obergrenze für die Flächenbelegung der Kruste mit ^{244}Pu für die ganze Höhe der Kruste gilt.

4.3 Erste Messung von SN-erzeugtem ^{244}Pu in einer Tiefseemangankruste

Für die erstmalige Messung von SN-produziertem ^{244}Pu wurde ebenfalls ein Stück der bereits im Abschnitt 4.1.1 auf Plutonium aus Kernwaffentests untersuchten Mangankruste 237 KD verwendet (siehe Abbildung 4.2).

4.3.1 Beschreibung der Probe

Der Ursprung und weitere Eigenschaften der Kruste wurden bereits in Abschnitt 4.1.1 erläutert. Dieses Stück der Kruste wurde von A. Mangini von der Universität Heidelberg für eine erste Messung von SN-erzeugtem ^{244}Pu zur Verfügung gestellt.

Die Probe besitzt einen Querschnitt von etwa 25 cm^2 und ist ca. 4.5 cm hoch. Von der Oberfläche der Kruste wurden 2 mm mechanisch entfernt, um bei der Messung eine Interferenz mit ^{244}Pu aus Kernwaffentests zu

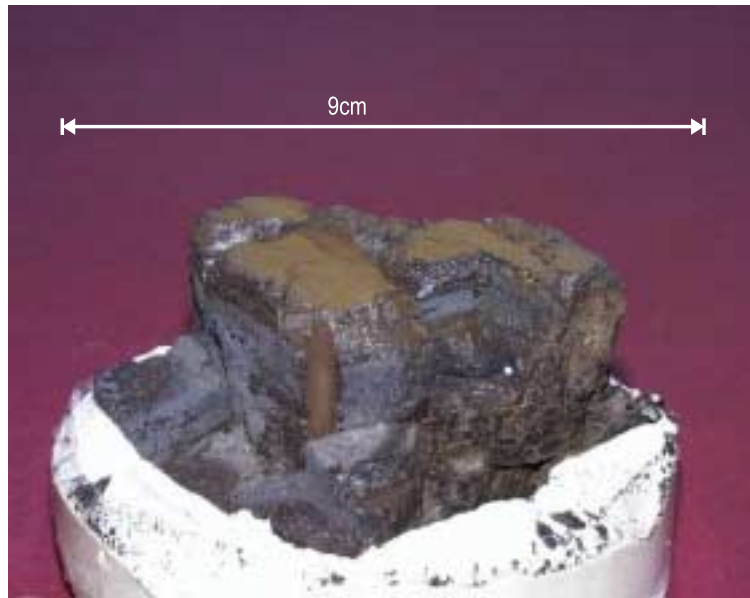


Abbildung 4.2: Stück der Mangankruste 237KD. Zur besseren Handhabung für anderweitige Untersuchungen wurde das Krustenstück in einen Sockel aus Gips eingelassen. Von der Oberfläche der Kruste wurden 2 mm entfernt, um bei der Messung Interferenz mit ^{244}Pu aus Atombombentests zu vermeiden. Die Kruste wurde bereits von Mangini et al. untersucht und datiert [SMH⁺84], deshalb fehlen sichtbar Bruchstücke der Kruste, an der Vorderseite der Kruste ist auch noch der Rest eines Bohrloches zu sehen.

vermeiden. Das Alter der Probe umfasst einen Bereich von etwa 1-15 Ma, die Probenmenge beträgt 120 g.

4.3.2 ^{244}Pu -Messung der Probe

Die Probe wurde mit $6.5 \cdot 10^9$ Atomen des Referenzisotops ^{236}Pu versehen und dann chemisch aufbereitet, wobei eine chemische Ausbeute von 50% erzielt wurde.

Um Querkontamination und Übersprechen zu vermeiden, wurden bei Vorbereitung und Durchführung der Messung folgende Bedingungen strikt eingehalten:

- Im Chemielabor, in dem die Probe aufbereitet wurde, wurden vorher nie ^{244}Pu - und ^{244}Cm -Proben, insbesondere Eichproben, verarbeitet.

Es wurden strikt neue Gefäße für die Probenaufbereitung verwendet.

- Für die AMS-Messung der Probe wurde eine frische und durch Sandstrahl gereinigte Quelle mit einem neuen Ionisatordraht verwendet.
- Während der Messzeit wurde keine Masse-244-Eichprobe verwendet, um eine Kontamination der Quelle zu vermeiden.

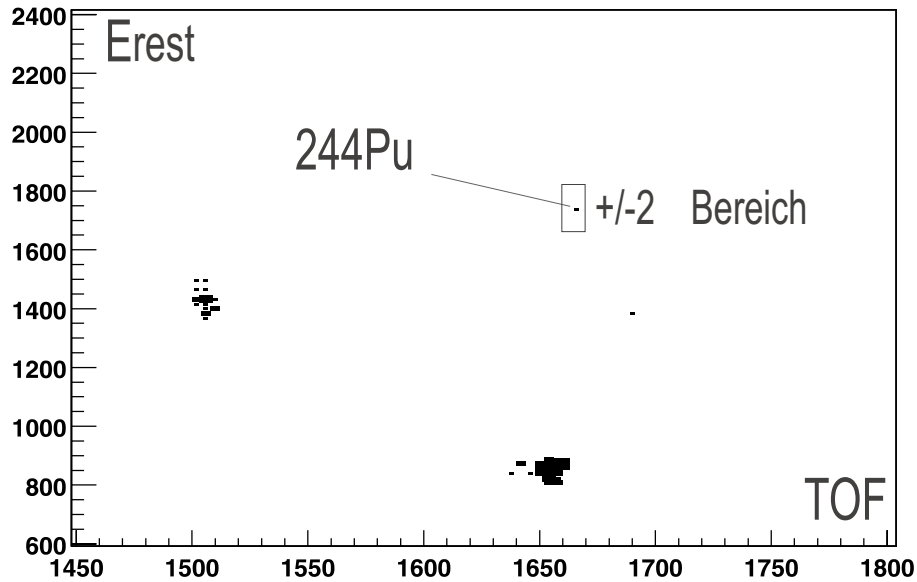


Abbildung 4.3: Spektrum der ersten Messung von SN erzeugtem ^{244}Pu in Tiefseemangankrusten. Das eingezeichnete $\pm 2\sigma$ Fenster bei Masse 244 wurde aus den Spektren einer ^{239}Pu - und einer ^{236}Pu -Eichquelle extrapoliert, da während der Messung der Probe keine Masse-244-Eichquelle verwendet wurde, um Querkontamination zu vermeiden.

Die Probe wurde bei der AMS-Messung vollständig aufgebraucht. Die gesamte Messzeit belief sich dabei auf etwa 60000 s, die Rate des Referenzisotops ^{236}Pu lag während dieses Zeitraumes im Bereich von 0.5 Hz bis 1.5 Hz. Insgesamt wurde ein Ereignis ^{244}Pu gemessen.

In Abbildung 4.3 ist das TOF/ E_{rest} -Spektrum dieser Messung dargestellt. In diesem Spektrum wurde bereits ein Software-Filter auf das ΔE -Signal des Frischgitters (siehe Abschnitt 3.4) im Bereich der Masse 244 gesetzt.

Das eingezeichnete $\pm 2\sigma$ Fenster bei Masse 244 wurde aus den Spektren einer ^{239}Pu - und einer ^{236}Pu -Eichquelle extrapoliert, da während der Messung

keine ^{244}Pu - oder ^{244}Cm -Eichquellen verwendet wurden, um Querkontaminationen zu vermeiden. Da das gemessene Ereignis sehr gut die angegebenen Fensterbedingungen erfüllt, wird davon ausgegangen, dass es ein echtes ^{244}Pu -Ereignis darstellt.

Ein gemessenes Ereignis bedeutet im Rahmen der Poisson-Statistik eine Anzahl von $(2.2_{-1.4}^{+3.8}) \cdot 10^5$ Atome ^{244}Pu im gesamten Probenmaterial unter Verwendung der unteren Grenze der Zählrate des Referenzisotops ^{236}Pu bzw. $(7.0_{-4.5}^{+13}) \cdot 10^4$ Atome ^{244}Pu unter Verwendung der oberen Grenze der Zählrate des ^{236}Pu .

Damit kann ein Vertrauensintervall des ^{244}Pu -Gehalts im Probenmaterial zu etwa $(0.25 - 6.0) \cdot 10^5$ Atome ^{244}Pu bestimmt werden. Die angegebenen Intervallgrenzen bilden dabei eine Ober- bzw. Untergrenze für ein 68%-Vertrauensintervall.

Mit der Querschnittsfläche der Kruste von 25 cm^2 ergibt sich für die Oberflächendichte ein Intervall von $(1000 - 24000)$ Atome $^{244}\text{Pu cm}^{-2}$.

Für den Fluss von ^{244}Pu in die 14 Ma umfassende Mangankruste kann damit ein Intervall von $70 - 1700$ Atome $^{244}\text{Pu cm}^{-2} \text{ Ma}^{-1}$ angegeben werden.

Unter Berücksichtigung der Einbaueffizienz $\alpha_{\text{Pu}} = (14 \pm 8)\%$ für Plutonium aus Abschnitt 4.1.1 liegt die Eintragsrate auf die Erdoberfläche in einem Bereich von $300\text{--}28000$ Atome $^{244}\text{Pu cm}^{-2} \text{ Ma}^{-1}$.

Wie bereits angemerkt, stellen die angegebenen Intervallgrenzen eine Ober- bzw. Untergrenze für ein 68%-Vertrauensintervall dar, dessen echte Grenzen enger liegen. Für eine Diskussion des Ergebnisses (Abschnitt 4.5) sind die angegebenen Vertrauensintervalle jedoch ausreichend.

Im folgenden Abschnitt wird diskutiert, mit welcher Wahrscheinlichkeit dieses Ereignis aus einer SN stammt und mit welcher Wahrscheinlichkeit es aus Untergrundkanälen in die Mangankrusten gelangt sein kann.

Die Konsequenzen dieser Messung, in Bezug auf die Modelle des zweiten Kapitels für den Eintrag von SN-erzeugten Aktiniden auf die Erdoberfläche, werden dann nachfolgend im Abschnitt 4.5 diskutiert.

4.4 Abschätzung des Beitrages möglicher Untergrundkanäle

Unterschieden werden muss hier zwischen „externem Untergrund“, also ^{244}Pu , das bereits vor der chemischen Extraktion in den Mangankrusten vorhanden war und „internem Untergrund“, also ^{244}Pu , das erst während oder nach der chemischen Extraktion in die Probe eingebracht wurde.

Für internen Untergrund wurden bereits die Blankmessungen in Abschnitt 3.5.3 diskutiert.

Für externen Untergrund kommen als einzige mögliche störende Kanäle für den Eintrag von Aktiniden auf die Erdoberfläche Kernwaffentests und sogenannte primordiale Kerne in Frage, die durch SNe vor der Entstehung unseres Sonnensystem vor mehr als 4.5 Ga in den präsolaren Nebel eingetragen wurde. Die primordialen Kerne können aus der Erdkruste ausgewaschen werden und ins Meer und damit zu den Mangankrusten gelangen.

In den nachfolgenden Abschnitten soll gezeigt werden, dass durch die betrachteten Kanäle eher vernachlässigbare Mengen an nicht SN-erzeugtem ^{244}Pu in die Krusten, bzw. in die Proben gelangen. Demzufolge muß nachgewiesenes ^{244}Pu mit an hoher Wahrscheinlichkeit aus SNe der jüngeren Vergangenheit stammen, oder aus dem kontinuierlichen Eintrag der mit langlebigen Aktiniden angereicherten ISM.

4.4.1 Untergrund aus der Erdkruste aus primordialer Produktion

Die relative Häufigkeit von ^{244}Pu zu ^{238}U bei der Entstehung unseres Sonnensystems vor $4.56 \cdot 10^9$ a betrug nach [HLMR71] aus Messungen der Spaltprodukte von ^{244}Pu in Meteoriten etwa 0.013. Mit der Halbwertszeiten von ^{244}Pu mit $(T_{1/2} = 8.08 \pm 0.10) \cdot 10^7$ a [nds86] und ^{238}U mit $T_{1/2} = 4.468 \cdot 10^9$ a beträgt damit das Verhältnis heute etwa $(2.7 \pm 1.3) \cdot 10^{-19}$.

Uran gelangt hauptsächlich aus kontinentaler Gesteinsverwitterung ins Meer [Bau93], für primordiales ^{244}Pu wird dies ebenfalls angenommen. Aufgrund der guten Löslichkeit des Uranylkomplexes [Bau93] beträgt die Aufenthaltsdauer des Urans im Meer etwa 0.4 Ma, die derzeitige ^{238}U -Konzentration

im Meerwasser beträgt $3.3 \mu\text{g/l}$ oder $8.3 \cdot 10^{12} \text{ }^{238}\text{U}/\text{cm}^3$ [Bau93]. Unter der Annahme, dass sich die Urankonzentration im Meer über die betrachteten Zeiträume von einigen zehn Millionen Jahren nur unwesentlich verändert hat, kann ein Gleichgewichtszustand zwischen Zuführung von Uran (und Plutonium) aus kontinentaler Gesteinsverwitterung und Abführung, z.B. durch Sedimentation zum Meeresboden, angenommen werden. Aufgrund der Durchmischung und durch die lange Aufenthaltsdauer des Urans kann außerdem eine homogene Verteilung im Meer angenommen werden. Der Urandurchsatz im Meerwasser beträgt, errechnet aus den angegebenen Zahlen, damit $\text{ca. } 2 \cdot 10^{13} \text{ }^{238}\text{U cm}^{-3}\text{Ma}^{-1}$. Durch die geringere Löslichkeit des Plutonium im Meerwasser liegt die Konzentration des primordialen ^{244}Pu im Uferbereich der Ozeane wahrscheinlich höher als im Bereich der Mangankrustengenese im Zentralpazifik oder Zentralatlantik. Als ungünstigster Fall wird aber für das Plutonium, analog zum Uran, auch eine homogene Durchmischung im Meer angenommen. Der Plutoniumdurchsatz beträgt damit $(2.7 \pm 1.3) \cdot 10^{-19}$ des Urandurchsatzes, entsprechend $(5.4 \pm 2.6) \cdot 10^{-6} \text{ }^{244}\text{Pu cm}^{-3}\text{Ma}^{-1}$. In einer Wassersäule von 1 cm^2 Querschnittsfläche und 5000 m Höhe (Tiefe) werden also je Million Jahr, unter Verwendung der oberen Fehlergrenze, weniger als 4 Atome ^{244}Pu gelöst. Unter Berücksichtigung der Einbaueffizienz werden folglich weniger als $1 \text{ Atome }^{244}\text{Pu cm}^{-2}\text{Ma}^{-1}$ in die Kruste eingebaut. Bei einer 14 Ma umfassenden Kruste beträgt die Bedeckung also weniger als $14 \text{ Atome }^{244}\text{Pu cm}^{-2}$ und liegt damit weit unter dem gemessenen Wert an SN-produziertem ^{244}Pu , Interferenz durch diesen Kanal ist damit so gut wie ausgeschlossen.

4.4.2 Anthropogener Untergrund

Wie in Abschnitt 4.2 gezeigt, liegt die gemessene Obergrenze für anthropogenen Untergrund im Inneren von Tiefseemangankrusten unterhalb von $190 \text{ }^{244}\text{Pu cm}^{-2}$.

4.4.3 Untergrund im Tracer

Der Untergrund im ^{236}Pu -Tracer betrug weniger als $^{244}\text{Pu}/^{236}\text{Pu} < 5 \cdot 10^{-6}$. Umgerechnet entspricht dies einer Obergrenze von $3 \cdot 10^4$ Atomen ^{244}Pu in der Probe, entsprechend einer Flächenbelegung von $1200 \text{ }^{244}\text{Pu cm}^{-2}$.

4.4.4 Ergebnis der Untergrundbetrachtung

In Tabelle 4.2 sind die möglichen Untergrund-Beiträge für ^{244}Pu zusammengefasst und werden mit der Messung des SN-produzierten ^{244}Pu in der Tiefseemangankruste 237KD verglichen. Der wahrscheinlichste Untergrundkanal ist dabei der ^{236}Pu -Tracer, dessen Obergrenze für den ^{244}Pu -Gehalt sich geringfügig mit dem Vertrauensintervall des Messergebnisses der Tiefseemangankruste überschneidet, wobei bereits angemerkt wurde, dass die echten Grenzen eines 68%-Vertrauensintervalls dieser Messung enger liegen.

Weitere Messungen des ^{244}Pu -Gehalts des Tracers sind nötig, um diesen Untergrundkanal mit höherer Signifikanz ausschließen zu können.

Unter der Annahme, dass die aufgeführten Untergrundkanäle neben SNe die einzig signifikanten Quellen für ^{244}Pu in der Tiefseemangankruste darstellen, kann das gefundene Ereignis ^{244}Pu ein möglicher, schwacher Hinweis für das Vorhandensein von ^{244}Pu im Interstellaren Raum sein.

^{244}Pu -Quellen:	^{236}Pu -Tracer	Anthropogen	Erdkruste	SN, gemessen
$[^{244}\text{Pu cm}^{-2}]$	< 1200	< 190	< 14	1000-24000

Tabelle 4.2: Abschätzung des ^{244}Pu -Untergrundes aus den bekannten Quellen, im Vergleich zur Messung von SN-erzeugten ^{244}Pu in der Tiefseemangankruste 237KD.

4.5 Diskussion des Messergebnisses

Unter der Annahme, dass das gemessene Ereignis ^{244}Pu aus der ISM stammt, konnte für den Fluss von SN-erzeugtem ^{244}Pu auf die Erdoberfläche ein Intervall von 300-28000 Atome $^{244}\text{Pu cm}^{-2} \text{ Ma}^{-1}$ bestimmt werden.

Die Untergrenze des theoretisch abgeschätzten Intervalles von $(0.13 - 3.2) \cdot 10^7$ Atomen $^{244}\text{Pu cm}^{-2} \text{ Ma}^{-1}$ für kontinuierlichen Eintrag aus Tabelle 2.7 ist dabei etwa um einen Faktor 50 höher, als der obere Grenzwert des Intervalles der Messung. Unter Berücksichtigung, dass für die Messung die echten Grenzen eines 68%-Vertrauensintervalles enger liegen, als die angegebenen Intervallgrenzen, ist der Unterschied zwischen Messung und Abschätzung wahrscheinlich sogar noch höher. Die möglichen Ursachen

dieser Diskrepanz sollen nachfolgend kurz diskutiert werden:

Es kann ausgeschlossen werden, dass sich das Sonnensystem in den vergangenen 15 Ma immer in einem Gebiet geringer ^{244}Pu -Dichte, z.B. in einer leergefegten Blase, befand, denn die Strecke, die das Sonnensystem in 15 Ma zurücklegt, ist weit größer, als die Ausdehnung einer SN-Blase. Ebenso kann aufgrund der großen mittleren Lebensdauer des ^{244}Pu eine relativ homogene Durchmischung der ISM entlang dieser Wegstrecke angenommen werden. Unter diesem Gesichtspunkt sind nur geringere Schwankungen der Eintragsrate vorstellbar.

Der Transport der Aktiniden im interstellaren, interplanetaren und terrestrischen Bereich wurde bereits diskutiert (siehe Abschnitt 2.3ff). Kleinere Abweichungen bei einer genaueren Diskussion der Transporteffizienz sind vorstellbar, größere Abweichungen in der Größenordnung der gemessenen Diskrepanz aber eher unwahrscheinlich.

Eventuell gibt diese Messung damit einen Hinweis, dass die Erzeugung von ^{244}Pu im r-Prozess seltener auftritt, als über die gemessene solare Häufigkeit der Aktiniden abgeschätzt werden kann.

Ein direkter Vergleich der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten ^{244}Pu -Messung mit den ^{60}Fe -Messungen aus [KKF⁺99] ist problematisch, da die Kruste, die einen Zeitraum von 14 Ma umfasst, als Ganzes auf ^{244}Pu untersucht wurde und nicht zeitaufgelöst gemessen werden konnte.

Kapitel 5

Ausblick

Im Rahmen dieser Dissertation wurde erstmals eine Messung zum Nachweis von SN-produzierten Aktiniden in Tiefseemangankonkretionen durchgeführt, wobei ein geringer Hinweis für die Existenz von SN-produziertem ^{244}Pu in einer Tiefseemangankruste gefunden wurde.

Der nächste Schritt bei der Suche von SN-erzeugten langlebigen Aktiniden ist die Messung einer größeren Anzahl von ^{244}Pu -Ereignissen aus SN in einer Mangankruste, um einen besseren Wert für den Fluss von ^{244}Pu auf die Erdoberfläche zu erhalten. Dazu werden Probenmengen der Größenordnung 1 kg benötigt. Aufgrund der Bestrebungen in den 80er Jahren, Mangankonkretionen als hochkonzentrierte Rohstoffquelle verschiedener Metalle zu verwenden, lagern ausreichend große Bestände an datierten und undatierten Mangankonkretionen in verschiedenen Instituten und können dort zum Teil für Messungen von SN-erzeugten Radionukliden zur Verfügung gestellt werden [vS99].

Ein weiterer Schritt ist die erstmalige Messung von SN-erzeugtem ^{247}Cm , wobei die chemische Extraktion von Curium komplizierter und aufwendiger ist, als von Plutonium, und hierzu noch Voruntersuchungen notwendig sind. Die Anreicherung der ISM mit ^{247}Cm ist nach Abschnitt 2.5.1 aufgrund der niedrigeren Produktionsraten und der geringeren Halbwertszeit um mindestens einen Faktor 30 niedriger als bei ^{244}Pu . Für einen Nachweis eines Atoms ^{247}Cm werden im günstigsten Fall etwa 2400 Atome ^{247}Cm benötigt, was unter Verwendung der ersten Messung von ^{244}Pu aus SN einer

Probenmenge von etwa 300 g entsprechen würde.

Ein Höhepunkt der Suche nach SN-erzeugten Radionukliden wäre die Messung der zeitlichen Verteilung verschiedener langlebiger Radionuklide in einer datierten Mangankruste und der damit verbundene mögliche Nachweis früherer SN-Ereignisse in der Nähe des Sonnensystems.

Durch die erstmalige Messung von Plutonium aus Kernwaffentests in Mangankonkretionen hat sich im Rahmen dieser Arbeit zusätzlich ein interessantes Gebiet eröffnet. Die Messung des Plutoniums aus Kernwaffentests stellt einerseits die einzige Möglichkeit dar, die Adsorptionswahrscheinlichkeit des Plutoniums an den Oberflächen der Mangankrusten zu bestimmen, welche wiederum für eine Bestimmung des Flusses von SN-erzeugtem ^{244}Pu auf die Erdoberfläche notwendig ist. Andererseits können aus der Messung des Adsorptionsverhaltens von Plutonium an Manganknollen und Mangankrusten möglicherweise neue Informationen über die Eigenschaften der beiden Mangankonkretionen gewonnen werden, so dass weitere Untersuchung von Interesse sind.

Zusätzliche Anwendungsbereiche der AMS mit Aktiniden werden im Anhang D angesprochen: die Messung von anthropogen erzeugten Aktiniden in Umweltproben, die Messung von neutroneninduziertem ^{239}Pu im Rahmen der Dosimetrieforschung und die Messung von ^{238}U in Gadolinium im Zusammenhang mit der Entwicklung nächsten Generation von Neutrinodetektoren. Für alle drei Bereiche wurden am Beschleunigerlaboratorium bereits vielversprechende Voruntersuchungen gemacht, weitere Messungen sind geplant.

Anhang A

Der Querschnitt $\sigma(r)$ von SN-Wolken

In diesem Abschnitt soll der Querschnitt $\sigma(r)$ von SN-Blasen mit einem bestimmten Alter t bestimmt werden und daraus die Trefferate des Sonnensystems mit SN-Blasen mit einem bestimmten Maximalalter t . Insgesamt sind zwei Möglichkeiten für das Zusammentreffen vorstellbar:

Trifft das Sonnensystem direkt auf eine SN-Blase mit Radius r (das Sonnensystem läuft der expandierenden Wolke entgegen), so ist deren Querschnittsfläche

$$\sigma_1(r) = r^2 \pi \quad (\text{A.1})$$

Die zweite Möglichkeit für das Zusammentreffen des Sonnensystems mit einer Explosionswolke der Ausdehnung r besteht darin, dass das Sonnensystem an einer anfangs kleineren Wolke vorbeiläuft und von dieser im Abstand r eingeholt wird. Zur Bestimmung des Wirkungsquerschnittes $\sigma_2(r)$ für diesen Fall betrachte man sich die Abbildung A. Es seien

r: Ausdehnung der SN-Wolke zum Zeitpunkt des Auftreffens des Sonnensystems

x: kleinster Abstand, in dem das Sonnensystem am Explosionszentrum vorbeifliegt

$v_\odot$: Geschwindigkeit und Bewegungsrichtung des Sonnensystems

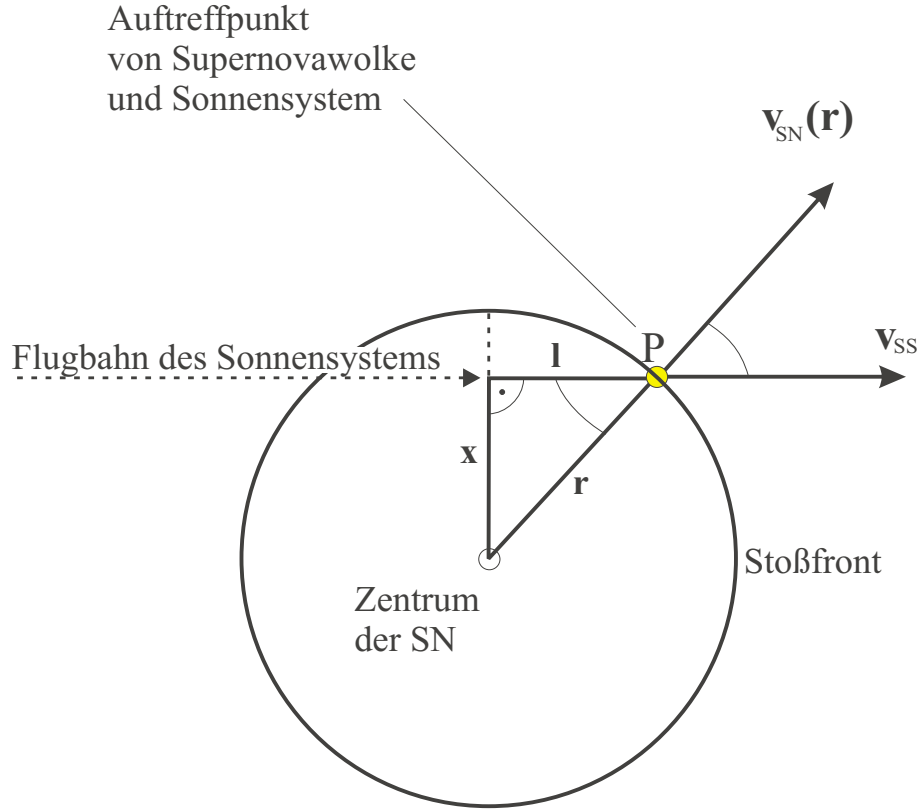


Abbildung A.1: Geometrische Darstellung zur Ermittlung des Wirkungsquerschnittes für das Eingeholtwerden des Sonnensystems durch eine SN-Wolke

$\mathbf{v}_{\text{SN}}(\mathbf{r})$: Geschwindigkeit und Bewegungsrichtung der Stoßfront am Auftreffpunkt

β : Winkel zwischen $\mathbf{v}_{\text{SN}}$ und $\mathbf{v}_{\odot}$

Am Auftreffpunkt P, an dem das Sonnensystem von der SN-Stoßfront gerade noch erreicht wird, gilt: Die Expansionsgeschwindigkeit der Stoßfront ist gleich dem Anteil der Geschwindigkeit des Sonnensystems parallel zur Expansionsrichtung, also:

$$v_{\text{SN}}(r) = v_{\odot} \cdot \cos \beta \quad (\text{A.2})$$

Fliegt das Sonnensystem im Abstand größer oder gleich x am Explosionszentrum vorbei, so kann ein Zusammentreffen zwischen Wolke und Sonnensystem in einem *bestimmten Abstand* r erfolgen. Für einen Vorbeiflug näher als

x ist ein Zusammentreffen im Abstand r nicht mehr möglich, da der Anteil der Geschwindigkeit des Sonnensystems parallel zur Expansionsrichtung der SN-Wolke größer ist, als die Expansionsgeschwindigkeit im Abstand r. Mit

$$\begin{aligned} r^2 &= x^2 + l^2 \quad \text{und} \\ l &= r \cdot \cos \beta = r \cdot \frac{v_{SN}(r)}{v_{\odot}} \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

folgt schließlich für x^2 :

$$x^2 = r^2 \left(1 - \frac{v_{SN}^2(r)}{v_{\odot}^2}\right) \quad (\text{A.4})$$

Zusammentreffen von Stoßfront und Sonnensystem bei einem exakten Trefferabstand r sind für einen Vorbeiflug mit $x \leq \text{Abstand}(\text{Vorbeiflug}) \leq r$ möglich, der Wirkungsquerschnitt $\sigma_2(r)$ für diesen Fall beträgt also

$$\sigma_2(r) = \pi r^2 - \pi x^2 = \pi r^2 \frac{v_{SN}^2(r)}{v_{\odot}^2} \quad (\text{A.5})$$

Der Gesamtwirkungsquerschnitt ist schließlich die Summe der Wirkungsquerschnitte der beiden Einzelfälle A.1 und A.5, also erhält man für die Trefferrate aus Gleichung 2.12 in Abschnitt 2.2.4:

$$d\Gamma = \pi \cdot r^2 \cdot \left(1 + \frac{v_{SN}^2(r)}{v_{\odot}^2}\right) \cdot \Gamma_{SN} \cdot \frac{v_{\odot}}{v_{SN}(r)} \cdot dr \quad (\text{A.6})$$

Die Trefferrate

Um die Rate zu bestimmen, mit der das Sonnensystem auf SN-Wolken mit einer Expansion von maximal r zu trifft, sind drei Bereiche bezüglich r zu unterscheiden:

- Mit der Bedingung $v_{\odot} = v_{SN}(r_E)$ definiert man einen Entkomm-Radius r_E , innerhalb dem das Sonnensystem der SN-Explosion in keinem Fall entkommen kann. Bei näherer Betrachtung der Gleichung A.4 sieht man auch, dass x komplex wird für $v_{\odot} < v_{SN}(r)$. Für einen Abstand $r < r_E$ erreicht also jede SN-Explosion das Sonnensystem, es gilt folglich für die Rate innerhalb des Entkommradius:

$$\Gamma(r) = \frac{4}{3} \pi r^3 \cdot \Gamma_{SN} \quad (\text{A.7})$$

- Außerhalb des Entkommradius r_E und innerhalb des Abbremsradius der SN-Stoßfront $r_A \approx 50\text{pc}$ (Abschnitt 2.2.2) wird die differentielle Trefferate durch Gleichung A.6 beschrieben, die Rate beträgt also

$$\begin{aligned} \Gamma(r) = & \frac{4}{3}\pi r_E^3 \cdot \Gamma_{SN} + \\ & \pi \Gamma_{SN} \cdot \int_{r_E}^r r^2 \cdot \left(1 + \frac{v_{SN}^2(r)}{v_{\odot}^2}\right) \cdot \frac{v_{\odot}}{v_{SN}(r)} \cdot dr \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

- Nach Erreichen des Abbremsradius r_A wird die Stoßfront nicht weiter expandieren, der Wirkungsquerschnitt der Wolken bleibt also konstant bei $r_A^2\pi$. Man kann die Rate bestimmen, mit der das Sonnensystem auf SN-Wolken mit einem bestimmten Höchstalter T trifft, diese beträgt:

$$\begin{aligned} \Gamma(T) = & \frac{4}{3}\pi r_E^3 \cdot \Gamma_{SN} + \\ & \pi \Gamma_{SN} \cdot \int_{r_E}^{r_A} r^2 \cdot \left(1 + \frac{v_{SN}^2(r)}{v_{\odot}^2}\right) \cdot \frac{v_{\odot}}{v_{SN}(r)} \cdot dr + \\ & \pi \Gamma_{SN} \cdot r_A^2 v_{\odot} \cdot (T - T_A) \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

T_A ist dabei der Zeitpunkt, an dem die Schockfront abgebremst ist.

Anhang B

Modell für den interplanetaren Transport

Das Ziel in diesem Abschnitt ist eine Abschätzung des mittleren Flusses ϕ des interstellaren Staubes auf die Erdoberfläche, im Vergleich zum Fluss ϕ_0 des interstellaren Staubes auf das Sonnensystem.

Das Verhältnis der über einen Jahreszyklus gemittelten Flüsse ergibt den Korrekturfaktor f^+ aus Abschnitt 2.4, mit dem der mittlere Fluss auf die Erdoberfläche aus dem Fluss auf das Sonnensystem berechnet werden kann:

$$f^+ = \frac{\int_0^{1a} \phi dt}{\int_0^{1a} \phi_0 dt} \quad (\text{B.1})$$

Hierbei wird angenommen, dass die betrachteten Radionuklide im Staub kondensiert sind [Eva94], ϕ und ϕ_0 stehen also auch für die Dichte eines Radionuklides in der interstellaren Materie.

Berücksichtigt man nur den Einfluss der Gravitation der Sonne, so strömt der interstellare Staub an der Sonne vorbei und wird hinter der Sonne fokussiert. Die Erde durchläuft dabei auf ihrem Weg um die Sonne Bereiche unterschiedliche Staubbichten n und wird von Staub aus zwei unterschiedlichen Richtungen getroffen, so dass eine Variation des Flusses ϕ auf die Erdoberfläche zu erwarten ist, wie im Abschnitt 2.4 diskutiert wurde.

Weiterhin kann durch das Gravitationsfeld der Erde auch Material, das außerhalb ihrer Bahn liegt, auf die Erdoberfläche gelangen, so dass deren effektiver Querschnitt $A_{eff}(|\vec{v}_{ISM} - \vec{v}_{\oplus}|)$ größer ist, als der geometrische Querschnitt der Erde $r_{\oplus}^2\pi$, mit $r_{\oplus}$ als Erdradius, $\vec{v}_{ISM}$ als Geschwindigkeit der

ISM im Sonnensystem und $\vec{v}_\oplus$ als Geschwindigkeitsvektor der Erde entlang der Erdbahn. Der Fluss ϕ des interstellaren Staubes auf die Erdoberfläche kann in diesem Modell ausgedrückt werden durch:

$$\phi = n \cdot |\vec{v}_{ISM} - \vec{v}_\oplus| \cdot \frac{A_{eff}(|\vec{v}_{ISM} - \vec{v}_\oplus|)}{O_\oplus} \quad (\text{B.2})$$

$O_\oplus = 4\pi r_\oplus^2$ ist dabei die Oberfläche der Erde, die viermal so groß ist wie deren geometrische Querschnittsfläche. Der Fluss auf die Erdoberfläche verringert sich um das Verhältnis aus effektivem Querschnitt und Oberfläche der Erde, da sich der Staub auf der gesamten Kugeloberfläche verteilt.

Der Fluss ϕ_0 des Staubes in Richtung des Sonnensystems kann ausgedrückt werden durch:

$$\phi_0 = n_{ISM} \cdot v_\odot \quad (\text{B.3})$$

mit $v_\odot$ als Geschwindigkeit des Sonnensystems gegenüber der interstellaren Materie und n_{ISM} als Dichte der ISM.

Im Folgenden sollen die einzelnen Bereiche dieses Modells kurz angesprochen werden:

Die Dichteverteilung n

Zur Bestimmung der Dichteverteilung n der ISM im Sonnensystem betrachte man sich Abbildung B.1. Es zeigt sich, dass die Erde von zwei Seiten von interstellarem Staub getroffen werden kann: Staub, der bereits um die Sonne beschleunigt wurde und Staub, der auf der „Erdseite“ der Sonne in Richtung Erde fließt, so dass im Modell für jeden Punkt der Erdbahn zwei Flusskomponenten mit unterschiedlicher Dichte und Geschwindigkeit bestimmt werden müssen. Die Trajektorien der Staubkörner der beiden Komponenten werden dabei bezeichnet durch den Sonnenabstand $r_1(\vartheta_1)$ und $r_2(\vartheta_2)$ mit dem Polarwinkel ϑ_α , wobei $r_\alpha(\vartheta)$ allgemein durch die Gleichung

$$r_\alpha(\vartheta) = \frac{b_{\alpha}^2 v_\odot^2}{GM_\odot (1 + \sqrt{1 + \frac{b_\alpha^2 v_\odot^4}{GM_\odot^2}} \cdot \cos(\frac{1}{2}\vartheta_{\alpha max} - \vartheta_\alpha))} \quad (\text{B.4})$$

dargestellt werden kann (zum Beispiel aus [Gol78]), mit $\alpha = 1, 2$, $M_\odot$ als Sonnenmasse, G als Gravitationskonstante und

$$\vartheta_{\alpha max} = -2 \cdot \arccos \left(1 + \left(\frac{b_\alpha v_\alpha^2}{GM_\odot} \right)^2 \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (\text{B.5})$$

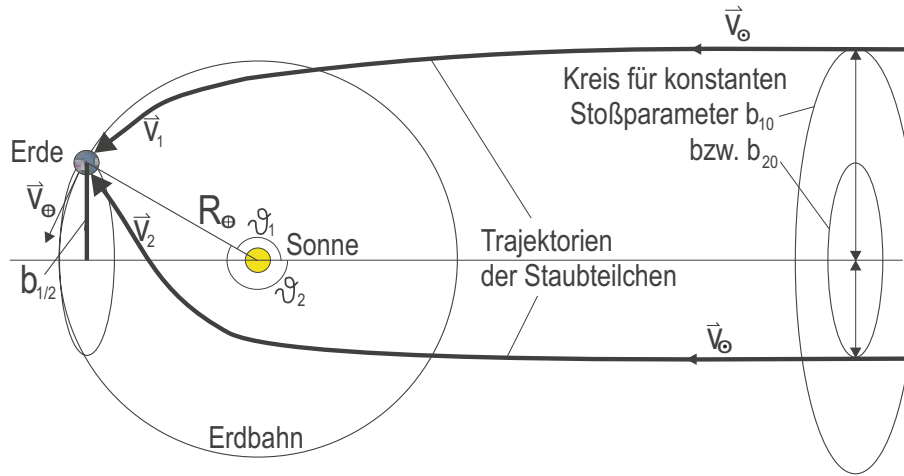


Abbildung B.1: Schematische Darstellung der Teilchentrajektorien des Interstellaren Staubes zur Erde. Die Erde kann in jedem Punkt ihrer Bahn von zwei Komponenten getroffen werden: Eine Komponente mit dem Streuparameter b_{10} , die andere Komponente mit dem Streuparameter b_{20} , die bereits um die Sonne herum gestreut wurde.

als maximaler Streuwinkel der Staubkörner um die Sonne.

Der eingezeichnete Kreis mit dem Abstand $b_1(\vartheta)/b_2(\vartheta)$ zur Symmetrieachse, der die Erdbahn schneidet, bezeichnet für die jeweilige Komponente 1 und 2 die Menge von Teilchen, welche den gleichen Abstand zur Sonne, die gleiche Geschwindigkeit und den gleichen Stoßparameter b_{10} bzw. b_{20} besitzen. Dadurch ist die Dichte n_α auf dem Kreis für die jeweilige Komponente konstant. Da die Trajektorien der Teilchen bei den betrachteten Geschwindigkeiten in größerem Abstand (1 AU) vom Streuzentrum Sonne nahezu als parallel verlaufend angenommen werden können, sind die Teilchenraten dN/dt durch eine infinitesimal breite Kreislinie $b_\alpha(\vartheta_\alpha)$ entlang einer Trajektorie $r_\alpha(\vartheta_\alpha)$ konstant, also auch gleich der Rate durch die Kreislinie mit dem Stoßparameter $b_{\alpha 0}$ in unendlicher Entfernung vom Sonnensystem. Unter Berücksichtigung der Geschwindigkeit $v_\alpha(r_\alpha)$ entlang der Trajektorie erhält man:

$$n_\alpha = n_0 \cdot \frac{v_\alpha(\vartheta_\alpha)}{v_\odot} \cdot \frac{b_{\alpha 0}(r_\alpha, \vartheta_\alpha)}{b_\alpha(r_\alpha, \vartheta_\alpha)} \quad (\text{B.6})$$

Entlang der Erdbahn ist r_α gleich konstant dem Radius der Erdbahn $R_\oplus$, wodurch der Geschwindigkeitsbetrag v_α der Staubkörner ebenfalls konstant wird. b_α variiert dabei mit $b_\alpha = R_\oplus \cdot \sin(\vartheta_\alpha)$. $b_{\alpha 0}(r_\oplus, \vartheta)$ kann aus der

Gleichung der Trajektorie B.4 für konstantes $r_\alpha = R_\oplus$ in Abhängigkeit von ϑ_α bestimmt werden, so dass n_α schließlich nur noch von ϑ_α abhängig ist.

Der effektive Querschnitt der Erde $A_{eff}(|\vec{v}_{ISM} - \vec{v}_\oplus|$

Durch die Erdgravitation können Teilchen auf einen Kollisionskurs mit der Erde gezwungen werden, deren Stoßparameter $b_\oplus$ bezüglich der Erde größer als der Erdradius $r_\oplus$ ist. Es kann durch Ersetzen von $\cos(\frac{1}{2}\vartheta_{\alpha max} - \vartheta_\alpha) = 1$ in der Gleichung der Bahntrajektorie leicht nachgeprüft werden, dass der Stoßparameter $b_\oplus$ für die minimale Annäherung $r_\oplus$ gegeben ist durch:

$$b_\oplus = r_\oplus \left(1 + \frac{2GM_\oplus}{r_\oplus \cdot |\vec{v}_\alpha - \vec{v}_\oplus|^2}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{B.7})$$

beziehungsweise als effektive Querschnittsfläche der Erde:

$$A_{eff}(|\vec{v}_\alpha - \vec{v}_\oplus|) = \pi b_{i\oplus}^2 = \pi r_\oplus^2 \left(1 + \frac{2GM_\oplus}{r_\oplus \cdot |\vec{v}_\alpha - \vec{v}_\oplus|^2}\right) \quad (\text{B.8})$$

Beispiel: Bei einer Relativgeschwindigkeit von 30 km/s erreichen Staubkörner mit einem Streuparameter von $1.13 r_\oplus$ noch die Erdoberfläche, A_{eff} vergrößert sich damit auf $1.29 r_\oplus^2 \pi$.

Berechnung des Faktors f^+

Der Winkel ε zwischen der Ebene der Ekliptik und der Bewegungsrichtung des Sonnensystems (=Flussrichtung der ISM) beträgt etwa $\varepsilon = 2.5^\circ$ [GGM⁺94]. Zwischen dem Azimutwinkel γ der Erdbewegung um die Sonne und der Winkelkoordinate ϑ der Staubbewegung besteht der Zusammenhang $\gamma = \arccos(\cos(\vartheta)/\cos(\varepsilon))$. Mit diesen Koordinaten lässt sich die Relativgeschwindigkeit $|\vec{v}_\alpha - \vec{v}_\oplus|$ zwischen Flugrichtung der Erde und der Teilchenflugrichtung leicht bestimmen und die Gleichung B.2 numerisch einfach integrieren.

Mit dem angenommenen Ekliptikwinkel $\varepsilon = 2.5^\circ$, einer Bahngeschwindigkeit der Erde von 30 km/s und einer Geschwindigkeit des Sonnensystems in der ISM von 30 km/s erhält man für f^+ einen Wert von etwa

$$f^+ \approx 1.4 \quad (\text{B.9})$$

Eine graphische Darstellung der Variation der Staubdichte n und des Flusses ϕ auf die Erdoberfläche in Abhängigkeit der Position γ der Erde befinden sich in Grafik 2.3 auf Seite 31.

Anhang C

Liste von Überriesen in Sonnensystemnähe

Insgesamt konnten aus [HM97] die folgenden 11 Sterne der Leuchtklasse I in einem maximalen Abstand von etwa 250 pc zu unserem Sonnensystem ermittelt werden.

HIP Kat. Nr.	Konstellation	Name des ÜR	Entfernung
26727	ζ Ori	Alnitak	251 ± 50 pc
80763	α Sco	Antares	185 ± 58 pc
27989	α Ori	Betelgeuze	131 ± 28 pc
30438	α Car	Canopus	96 ± 5 pc
107315	ϵ Peg	Enif	206 ± 36 pc
15863	α Per	Mirphak	182 ± 22 pc
11767	α UMi	Polaris	132 ± 9 pc
109074	κ Peg	Sadalmelik	233 ± 45 pc
27366	κ Ori	Saiph	221 ± 38 pc
45556	ι Car	Tureis	212 ± 21 pc
24436	β Ori	Rigel	237 ± 46 pc

Tabelle C.1: Liste von Überriesen im Umkreis von ungefähr 250 pc um unsere Sonnensystems. Die erste Spalte bezeichnet die Hipparcos-Katalog-Nr., die zweite Spalte beschreibt die Konstellation des Sternes (griechischer Buchstabe: Rangfolge in der Helligkeit in einem Sternbild, Abkürzung des Sternbildnamens). Bei der Bezeichnung der Sterne in der dritten Spalte wurde die traditionelle Namensgebung verwendet. Die Distanzen in der vierten Spalte wurden aus den trigonometrischen Parallaxen der Sterne aus der Online-datenbank der Hipparcos-Mission ermittelt [HM97].

Anhang D

Weitere Aufgaben der AMS

Wie in der Einleitung bereits einführend erwähnt, werden in diesem Abschnitt des Anhangs weitere Anwendungsmöglichkeiten der AMS in der Messung von Aktiniden diskutiert.

Messung von Kontaminationen im Umweltbereich

Eine wichtige Aufgabe stellt die Überwachung der Sicherheit nuklearer Anlagen, wie Kernkraftwerke, Anlagen mit heißen Zellen, Aufbereitungsanlagen und Anreicherungsanlagen dar. Um Kontaminationen der Umwelt zu vermeiden, bzw. frühzeitig zu erkennen und mögliche Schäden geringzuhalten, ist es notwendig, in verschiedenen Bereichen in und in der Nähe der kerntechnischen Anlagen Proben zu nehmen und auf Kontamination hin zu untersuchen.

Dabei ist eine wichtige Hürde bei der Messung die Unterscheidung von anthropogen produziertem Uran zu Natururan und von Plutonium, welches in der jüngeren Vergangenheit freigesetzt wurde, zu Plutonium aus den Kernwaffentests der 50er und 60er Jahre.

Bei Uran liegt der Schwerpunkt in diesem Fall bei der Messung von ^{236}U , das im Natururan einen Anteil von nur etwa 10^{-10} ausmacht und dessen Konzentration in diesem Bereich mittels AMS gut gemessen werden kann [ZNKL94]. In Kernreaktoren kann der ^{236}U -Anteil aufgrund von Neutroneneinfang an ^{235}U bis auf 10^{-2} ansteigen. Bereits geringe Verunreinigung von Natururan mit Reaktoruran können damit Veränderungen im $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ -Verhältnis hervorrufen.

Überwachung der Einhaltung von Nonproliferations-Bestimmungen

Nicht nur Gründe des Umweltschutzes machen die Überwachung von kerntechnischen Anlagen notwendig, auch politische Gründe, z.B. die Überwachung von Abkommen zur Produktion von Kernwaffen. Aufgrund der Isotopenzusammensetzung von spaltbarem Material kann auf den Verwendungszweck oder die Herkunft des Materials geschlossen werden. Da vor allem in Krisengebieten wie z.B. Irak oder Nord-Korea eine Probenbeschaffung eventuell große Schwierigkeiten bereiten kann, ist gerade hier eine Messmethode von Vorteil, die mit sehr geringen Probenmengen auskommt, bei der, zum Beispiel, ein Wischtest in der Nähe einer kerntechnischen Anlage, ausreichend für eine aussagekräftige Messung ist. In Zusammenarbeit mit der internationalen Atomenergiebehörde IAEA wird eigens zu diesem Zweck eine für Aktiniden dedizierte AMS-Anlage durch die Argentinische Atomaufsicht ARN (Autoridad Regulatoria Nuclear) in Buenos Aires aufgebaut. In Zusammenarbeit mit ARN wurden dazu am Beschleunigerlabor in München verschiedene Voruntersuchungen zur Reinheit von möglichen Materialien für die Targethalter durchgeführt, wobei hochreines Aluminium mit einem Reinheitsgrad von 99.999 %¹ sich bisher als am vielversprechendsten erwiesen hat.

Anwendungen in der Dosimetrie

Die überlebende Bevölkerung der Atombombenabwürfe von Hiroshima und Nagasaki stellt ein einzigartiges Kollektiv dar, um die Auswirkungen von radioaktiver Strahlung auf den menschlichen Organismus zu untersuchen. In diesem Zusammenhang wird durch das Dosimetriesystem DS86 jedem Überlebenden der Atombombenexplosionen rechnerisch eine bestimmte Strahlendosis zugeordnet, um aus den strahlenbedingten Erkrankungen der Überlebenden ein allgemeines Strahlenrisiko abzuschätzen. Das Risiko vor allem niedriger Dosen wird stark diskutiert, es besteht also gerade hier ein

¹Fa. Alfa Aesar, Aluminium 99.999%

großer Informationsbedarf, um deren Risiko zu quantifizieren. Ein weiteres Problem bildet auch die Diskrepanz zwischen rechnerisch bestimmten und bisher gemessenen Strahlungsdosen, so dass weitere Messungen zur genaueren Spezifizierung und Lösung dieses Problems nötig sind.

Ein wichtiger Beitrag zur Strahlendosis wird durch die Neutronendosis geleistet. In diesem Zusammenhang konnte für schnelle Neutronen, die den größten Teil der Neutronendosis ausmachen, erstmals in München durch die Messung von ^{63}Ni , das in Hiroshima über eine (n,p)-Reaktion an Kupferproben entstand, die Neutronenfluenz in einem großen Abstand (1500m) vom Explosionzentrum bestimmt werden.

Für eine Rekonstruktion der Neutronenfluenz von *epithermischer* Neutronen kann eventuell ^{239}Pu verwendet werden [R00], das aus einer (n, γ)-Reaktion aus ^{238}U mit epithermischen Neutronen gebildet werden kann. Der Anteil von Natururan in vorhandenen Proben (Granit) liegt im Bereich von 1 ppm. Der thermische Wirkungsquerschnitt von ^{238}U beträgt 2.7 barn, der Wirkungsquerschnitt des Resonanzintegrals 278 barn. Der Wirkungsquerschnitt für die (n, γ)-Reaktion durch schnelle Neutronen ist gering und kann vernachlässigt werden.

Am Hypozentrum der Explosion der Hiroshima-Bombe, also dem Punkt auf der Erdoberfläche senkrecht unter der Explosion in etwa 580 m Abstand zum Epizentrum (=Explosionszentrum), betrug die Fluenz termischer Neutronen etwa $1.1 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, die Fluenz epithermischer Neutronen etwa $1.4 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ (Rechnerischer Wert nach Dosimetriesystem DS86).

Damit ergibt sich ein Verhältnis von $^{239}\text{U}/^{238}\text{U}$ von $4.2 \cdot 10^{10}$, wobei etwa 93% durch epithermische Neutronen erzeugt werden. Diese Reaktion stellt also einen nahezu reinen Monitor für epithermische Neutronen dar.

Pro Gramm Granit werden also etwa $1 \cdot 10^6$ ^{239}U -Kerne produziert, oder unter der Annahme, dass diese alle in ^{239}Pu zerfallen, ebenso viele ^{239}Pu -Kerne.

Mit dieser Anzahl würden bei einer Messung unter optimalen Bedingungen etwa 100 Ereignisse im Detektor gezählt werden können, 1 g Probenmaterial wäre hier also ausreichend. Im Abstand von 500 m vom Hypozentrum wäre die Neutronenfluenz grob eine Größenordnung geringer, somit wären also noch 10g Probenmaterial für eine Messung mit geringem statistischen Fehler ausreichend. Anzumerken sei, dass bei weit größeren Abständen vom Hypozentrum im Prinzip keine Beschränkung in der Auswahl der Menge des Pro-

benmaterials besteht, da Plutonium, wie bereits in der Einleitung erwähnt, nahezu beliebig angereichert werden kann.

Die Reaktion $^{238}\text{U}(\text{n}, \beta^-)^{239}\text{Pu}$ wäre der erste nahezu reine Monitor für epithermische Neutronen. Somit könnte eine Messung des Bomben-induzierten ^{239}Pu in Granit aus Hiroshima möglicherweise neue und wichtige Informationen über die Ursprünge der Diskrepanz der gemessenen zu den gerechneten Neutronenfluenzen der Atombombe liefern.

Entwicklung einer neuen Generation von ν -Detektoren

Mit LENS (Low Energy Neutrino Spectroscopy) soll eine neue Generation von Neutrinodetektoren zum Nachweis niederenergetischer Neutrinos aus der Sonne entwickelt werden. Die Detektionsmethode basiert auf ν -Einfang z.B. an ^{160}Gd . Dazu werden mehrere Tonnen von hochreinem Gadolinium benötigt. Ein wichtiger Untergrund stellt Natururan dar, wobei AMS zur Zeit die einzig mögliche Methode ist, untergrundfrei die geforderte niedrige ^{238}U -Konzentration in Gadolinium zu messen.

Wie bereits im 2.Abschnitt dieses Kapitels des Anhangs erwähnt, sind erste Untersuchungen von Targethaltern auf ihre ^{238}U -Untergrundfreiheit sehr vielversprechend verlaufen.

Verzeichnis wichtiger Symbole und Größen

Verzeichnis wichtiger Symbole

α_i	Effizienz des Einbaues für ein Radionuklid i in Mangankrusten
A_{eff}	Effektive Querschnittsfläche der Erde für den Einfang von ISM
AMS	Accelerator Mass Spectrometry
$b_{\oplus}, b_{\alpha}(r_{\alpha}, \vartheta_{\alpha})$	Stossparameter der ISM mit der Erde, bzw. mit dem Sonnensystem
d.p.m	decays per minute
ε	Neigungswinkel der Ekliptik gegenüber der Fließrichtung der ISM
$\Delta E, \Delta E_1, \Delta E_2$	Energieverlustsignale der Ionisationskammer
E_{rest}	Energieverlustsignal des Oberflächensperrschichtzähler
f^+	Transporteffizienz der ISM im Sonnensystem
$f^{\#}$	Richtungsfaktor beim Eindringen des Sonnensystems in die SN-Stoßfront
ϕ	mittlerer Fluss interstellarer Materie auf die Erde
ϕ_0	mittlerer Fluss interstellarer Materie auf das Sonnensystem

Γ_{SN}	Supernovahäufigkeit im Bereich unseres Sonnensystems
γ	Winkelkoordinate der Erdbahn um die Sonne
ISM	Interstellare Materie
LIC	Lokale interstellare Wolke (local interstellar cloud)
LISM	Lokale interstellare Materie
$M_{\odot}$	Sonnenmasse
m_0	Gesamtmasse der abgestoßenen Supernovahülle
$m_i(r)$	Gesamtmasse des Radionuklides i in der SN-Stoßfront (Anteil Hülle + Anteil aufgesammelte ISM)
m_*	Masse der Stoßfront am Ende der Sedovphase
M_i	Masse des Radionuklides i in der abgestoßenen Supernovahülle
n_i	Teilchendichte des Radionuklides i in der ISM
n_{ISM}	Teilchendichte der ISM
n, n_{α}	Dichteverteilung der ISM im Sonnensystem
N_i	Teilchenzahl der in einer Supernova produzierten Radionuklide i
PUP	Pile-Up-Signal
r	Radius einer Supernovastößfront
$r_{\oplus}$	Radius der Erde
$R_{\oplus}$	Radius der Erdbahn
$r_{\alpha}(\vartheta)$	Trajektorien der ISM im Sonnensystem
ρ_{ISM}	Massendichte der ISM

ρ_i	Massendichte des Radionuklides i in der ISM
SN	Supernova
SV	Säulenvolumen (chemische Extraktion)
$\sigma(r)$	Wirkungsquerschnitt einer Supernovablase
$\sigma_i(r)$	Massenbelegung der SN-Stoßfront mit dem Radionuklid i
<i>TOF</i>	Signal der Flugzeitmessung
ϑ	Winkelkoordinate der Trajektorien der ISM im Sonnensystem
v_*	Geschwindigkeit der Stoßfront am Ende der Sedovphase
$v_\odot$	Geschwindigkeit des Sonnensystems in der ISM
$v_\oplus$	Geschwindigkeit der Erde um die Sonne
v_{ISM}, v_α	Geschwindigkeit der ISM im Sonnensystem
$v_{SN}(r)$	Expansionsgeschwindigkeit einer SN-Stoßfront

Astronomische Einheiten und Größen

Jahr	$1 \text{ a} = 3.156 \cdot 10^7 \text{ s}$
------	--

Astronomische Einheit = mittlerer Abstand Erde-Sonne

$$1 \text{ AU} = 1.496 \cdot 10^9 \text{ m}$$

Lichtjahr	$1 \text{ lj} = 9.461 \cdot 10^{15} \text{ m}$
-----------	--

Parsec	$1 \text{ pc} = \frac{60^2 \cdot 360}{2\pi} \text{ AU} = 206265 \text{ AU}$
	$1 \text{ pc} = 3.086 \cdot 10^{16} \text{ m}$
	$1 \text{ pc} = 3.262 \text{ lj}$

Geschwindigkeit	$1 \frac{\text{km}}{\text{s}} = 1.023 \frac{\text{pc}}{\text{Ma}}$
-----------------	--

Sonnenmasse	$1 \text{ M}_\odot = 1.989 \cdot 10^{30} \text{ kg}$
-------------	--

Abbildungsverzeichnis

2.1	Idealisierte Darstellung einer SN-Explosion und der Expansion der SN-Stoßfront in der ISM	10
2.2	Idealisierte Darstellung des zeitlichen Verlaufs des Eintrags von SN-Material auf die Erdoberfläche beim Durchgang durch eine SN-Stoßfront. Die Signalhöhen sind dabei willkürlich gewählt.	11
2.3	Darstellung der Dichteverteilung der ISM entlang der Erdbahn (Winkel γ) und des Staubflusses auf die Erdoberfläche entlang der Erdbahn. Die Dichte der ISM $n(\gamma)$ ist relativ zur Dichte der ISM n_0 ausserhalb des Sonnensystems angegeben, der Staubfluss $\phi(\gamma)$ relativ zum Staubfluss ϕ_0 ausserhalb des Sonnensystems. Die ISM wurde aus $\gamma = 0$ Grad kommend angenommen, der Neigungswinkel der Ekliptik gegenüber der Bewegungsrichtung der ISM mit 2.5 Grad, die Erdbahngeschwindigkeit mit 30 km/s und die Geschwindigkeit der ISM relativ zum Sonnensystem ebenfalls mit 30 km/s. Zu Einzelheiten des zugrunde liegenden Modelles siehe Anhang B.	31
2.4	Gepulster Eintrag für ^{60}Fe , ^{244}Pu und ^{247}Cm aus einer SN mit Masse $20 M_{\odot}$ (durchgezogene Linie). Das stärkere Absinken der ^{60}Fe -Kurve ab etwa 25 pc ist auf die Halbwertszeitkorrektur zurückzuführen. ^{244}Pu -Kurve steigt am Ende wieder an, da die Explosionswolke durch ^{244}Pu aus der ISM dominiert wird. Die gestrichelten Linien stellen den Anteil von ^{244}Pu und ^{244}Cm aus der ISM dar, bzw. die Massenbelegung für eine SN-Stoßfront, bei der angenommen wurde, dass kein r-Prozess mit ^{244}Pu - und ^{244}Cm -Produktion stattfand und beide Nuklide nur aus der ISM aufgefegt wurden.	37

3.1	Schema der chemischen Extraktion von Aktiniden aus Mangankrusten	55
3.2	Schematische Darstellung zum Resputter-Prozess. Der Verlustkegel für neutral gesputterte Teilchen ist im linken, tieferen Targetträger kleiner als im rechten Targetträger.	57
3.3	Gesamtaufbau der Messanlage. Eingezeichnet wurden die wichtigsten Elemente. Auf der Niederenergieseite erfolgt die Strahlführung, bis auf den 90°-Analysiermagnet, ausschließlich durch elektrostatische Komponenten. Beim Umschalten zwischen zwei Isotopen wird die Energie konstant gehalten (elektrische Steifigkeit) und nur das Magnetfeld verändert. Auf der Hochenergieseite erfolgt die Strahlführung, bis auf einen Wienfilter, durch magnetische Komponenten. Beim Umschalten zwischen zwei Isotopen wird auf der Hochenergieseite nur die Energie durch die Tandemspannung verändert, die magnetische Steifigkeit bleibt konstant.	59
3.4	Schematische Darstellung der Ionisationskammer mit Oberflächensperrschicht-Zähler mit berechneten elektrischen Feld- und Potentiallinien.	61
3.5	Verschaltung der Datenaufnahmeelektronik.	63
3.6	ΔE -Spektrum, E_{rest} -Spektrum und TOF-Spektrum für die Rohdaten (linke Spalte) der Messung einer ^{244}Cm -Eichquelle und für gefilterte Daten (rechte Spalte). Die Skalierung der Spektren ist dabei willkürlich. In den Spektren der linken Spalte wurde ein Softwarefilter auf ein Fenster im ΔE -Spektrum von Kanal #1900 bis #2100 gelegt, wie in der Grafik angezeigt. Nähere Erläuterungen siehe Text.	67
3.7	E_{rest} /TOF-Spektrum einer ^{244}Cm -Eichquelle im Vergleich mit dem Rohdaten-Spektrum einer Blankmessung und einem Spektrum derselben Messung mit gefilterten Daten. Die Fensterbedingung wurde dabei in der Energieverlustmessung ΔE (Frischgitter-Signal, hier nicht gezeigt) auf einen Bereich $\pm 2\sigma$ um den Schwerpunkt der Masse 244 gesetzt.	72
3.8	Spektren von ^{238}U und von verschiedenen Plutoniumisotopen, Erläuterungen siehe Abschnitt 3.5.4	74

- 4.1 Graphische Darstellung (Quadrate) der relativen Ausbeuten verschiedener Plutoniumisotope aus der Messung der Mn-Knollen 251GBH aus Tabelle 4.1. Die Werte sind auf den Mittelwert von ^{239}Pu normiert, der Wert von ^{241}Pu wurde um 30 a zerfallskorrigiert. Darübergelegt wurden die gemessenen Werte [DFS⁺60] der Ausbeuten einer Kernwaffenexplosion aus den 60er Jahren (Dreiecke). Das Fehlen von ^{243}Pu ist auf dessen kurze Halbwertszeit von etwa 5 h zurückzuführen, stattdessen wurde in der Grafik ein Messwert für ^{243}Am (Zerfallsprodukt von ^{243}Pu) aus [DFS⁺60] verwendet, dessen relative Häufigkeit etwa der anfänglichen ^{243}Pu -Menge direkt nach der Explosion entspricht. 82
- 4.2 Stück der Mangankruste 237KD. Zur besseren Handhabung für anderweitige Untersuchungen wurde das Krustenstück in einen Sockel aus Gips eingelassen. Von der Oberfläche der Kruste wurden 2mm entfernt, um bei der Messung Interferenz mit ^{244}Pu aus Atombombentests zu vermeiden. Die Kruste wurde bereits von Mangini et al. untersucht und datiert [SMH⁺84], deshalb fehlen sichtbar Bruchstücke der Kruste, an der Vorderseite der Kruste ist auch noch der Rest eines Bohrloches zu sehen. 86
- 4.3 Spektrum der ersten Messung von SN erzeugtem ^{244}Pu in Tiefseemangankrusten. Das eingezeichnete $\pm 2\sigma$ Fenster bei Masse 244 wurde aus den Spektren einer ^{239}Pu - und einer ^{236}Pu -Eichquelle extrapoliert, da während der Messung der Probe keine Masse-244-Eichquelle verwendet wurde, um Querkontamination zu vermeiden. 87
- A.1 Geometrische Darstellung zur Ermittlung des Wirkungsquerschnittes für das Eingeholtwerden des Sonnensystems durch eine SN-Wolke 96

B.1	Schematische Darstellung der Teilchentrajektorien des Interstellaren Staubes zur Erde. Die Erde kann in jedem Punkt ihrer Bahn von zwei Komponenten getroffen werden: Eine Komponente mit dem Streuparameter b_{10} , die andere Komponente mit dem Streuparameter b_{20} , die bereits um die Sonne herum gestreut wurde.	101
-----	--	-----

Tabellenverzeichnis

1.1	Liste langlebiger Aktiniden, die zum Nachweis von SNe geeignet sind, mit deren Halbwertszeiten im Vergleich zu ^{60}Fe , das bereits in einer Tiefseemangankruste nachgewiesen wurde [KKF ⁺ 99]	4
2.1	Tabelle mit SN-erzeugten, langlebigen Aktiniden und deren Mutternukliden	14
2.2	Halbwertszeiten der in Tabelle 2.1 angegebenen SN-produzierten Aktiniden und deren Mutterkerne. Die Halbwertszeit von ^{244}Pu stammt aus [nds86], sonstige Aktiniden aus [PKNSE95].	14
2.3	Abschätzung der relativen Häufigkeiten der betrachteten langlebigen Radionuklide gegenüber Si für SN-Produktion. Die Wertebereiche wurden aus den Ergebnissen verschiedener Nukleosynthese-Rechnungen bestimmt. Zu deren Ursprung siehe Text.	16
2.4	Mögliche absolute Ausbeuten von ^{60}Fe , ^{244}Pu und ^{247}Cm einer $20 M_{\odot}$ -SN für das SN-Modell S20A aus [WW95].	16
2.5	Häufigkeit des Zusammentreffens des Sonnensystems mit Supernovawolken, in Abhängigkeit von deren maximalen Radius und Höchstalter. Es wurde angenommen, dass eine Explosionswolke bei 50 pc zum Stillstand kommt und nicht weiter expandiert.	23

2.6	Mittlere Anreicherung der Interstellaren Materie mit ^{60}Fe , ^{244}Pu und ^{247}Cm unter der Annahme einer kontinuierlichen Produktion durch SNe mit einer SN-Rate von $\Gamma_{\text{SN}} = (8 \pm 4) \cdot 10^{-8} \text{ pc}^{-3} \text{ Ma}^{-1}$ und den angegebenen Produktionsraten (Aus Tabelle 2.6)	33
2.7	Mittlere kontinuierliche Flüsse SN-produzierter Radionuklide auf die Eroberfläche.	34
3.1	Verhältnisse der Ausbeuten negativer Plutoniumfluorid-Ionen. Normiert auf die mittlere Zählrate von PuF_4^- (entspricht 100%). Die angegebenen Abweichungen sind 1σ -Fehler. Neben dem statistischen Fehler wurde ein systematischer Fehler von 20% aufgrund von Schwankungen der Quellenleistung und aufgrund von Transmissionsunterschieden angenommen.	68
3.2	Ergebnisse der Ausbeutemessung von negativ geladenen $^{239}\text{PuO}^-$ - und $^{239}\text{PuF}_4^-$ -Molekülen. Ein systematische Fehler von etwa 20% begründet sich hauptsächlich auf die Unsicherheit der Probenentleerung am Ende der Messung, welche aus einer Extrapolation der Zählraten ermittelt wurde.	69
3.3	Sputterausbeuten und Nachweisgrenzen von CmO^- und PuO^- an der Münchner AMS-Anlage, bei einer Transmission von 3%.	70
4.1	Plutoniumkonzentrationen in einer 850 g-Probe der Manganknollen 251GBH (nähere Angaben siehe Text). Konzentrationen sind in 10^6 Atome/Gramm, die angegebenen Fehler sind 1σ -Fehler. Neben dem statistischen Fehler wurde ein systematischer Fehler von 10% aufgrund von Schwankungen der Quellenleistung und Unterschieden in der Transmission angenommen. Die gemessenen Isotopenverhältnisse sind typisch für Kernwaffentests, siehe dazu auch Abbildung 4.1.	81
4.2	Abschätzung des ^{244}Pu -Untergrundes aus den bekannten Quellen, im Vergleich zur Messung von SN-erzeugten ^{244}Pu in der Tiefseemangankruste 237KD.	91

- C.1 Liste von Überriesen im Umkreis von ungefähr 250 pc um unsere Sonnensystems. Die erste Spalte bezeichnet die Hipparcos-Katalog-Nr., die zweite Spalte beschreibt die Konstellation des Sternes (griechischer Buchstabe: Rangfolge in der Helligkeit in einem Sternbild, Abkürzung des Sternbildnamens). Bei der Bezeichnung der Sterne in der dritten Spalte wurde die traditionelle Namensgebung verwendet. Die Distanzen in der vierten Spalte wurden aus den trigonometrischen Parallaxen der Sterne aus der Onlinedatenbank der Hipparcos-Mission ermittelt [HM97]. 104

Literaturverzeichnis

- [AAAM80] L.W. Alvarez, W. Alvarez, F. Asaro, and H.V. Michel. Extra-terrestrial cause for the cretaceous-tertiary extinction. *Science*, 208:1095, 1980.
- [AF82] R.F. Anderson and A.P. Fleer. Determination of natural actinides and plutonium in marine particulate material. *Anal. Chem.*, 54:1142, 1982.
- [AG89] E. Anders and N. Grevesse. Abundances of the elements: meteoritic and solar. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 53:197, 1989.
- [Bau93] N. Baur. *Geochemische Variationen in Mangankrusten unterschiedlicher Wassertiefen aus dem Äquatorialpazifik während der letzten 350.000 Jahre - ihre Bedeutung für die ozeanische Wassersäule*. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 1993.
- [BH87] K.O. Buesseler and J.E. Halverson. The mass spectrometric determination of fallout ^{239}Pu and ^{240}Pu in marine samples. *J. Environ. Radioactivity*, 5:425, 1987.
- [BK87] K. Bunzl and W. Kracke. Simultaneous determination of plutonium and americium in biological and environmental samples. *J. Radional. Nucl. Chem*, 115:13, 1987.
- [BLFVM93] P. Bertin, R. Lallement, R. Ferlet, and A. Vidal-Madjar. Detection of the interstellar cloud from high-resolution spectra of nearby stars: interferences on the heliospheric interface. *Geophys. Res.*, 98:15193, 1993.

- [BLS⁺98] C. Boude, R. Lutter, O. Schaile, K. Schöffel, K. Steinberger, and P.G. Thirolf. Marabou - a MBS and ROOT based online offline utility. *Beschleunigerlabor München, Jahresbericht*, 1998.
- [BNLV80] V.T. Bowen, V.E. Noshkin, H.D. Livingston, and H.L. Volchok. Fallout radionuclides in the pacific ocean: Vertical and horizontal distribution, largely from geosecs stations. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 49:411, 1980.
- [BS80] J.M. Bahcall and R.M. Soneira. The universe at faint magnitudes. i.models for the galaxie and the predicted star counts. *Astrophys. J. Suppl. S.*, 44:73, 1980.
- [CTT91a] J.J. Cowan, F.-K. Thielemann, and J.W. Truran. The r-process and nucleochronology. *Phys. Rep.*, 208:267, 1991.
- [CTT91b] J.J. Cowan, F.-K. Thielemann, and J.W. Truran. Radioactive dating of the elements. *Ann. Rev. Astron. Astrophys.*, 29:447, 1991.
- [CTT⁺97] E. Cappellaro, M. Turatto, D.Yu. Tsvetkov, O.S. Bartunov, C. Pollas, R. Evans, and M. Hamuy. The rate of supernovae from the combined sample of five searches. *Astron. Astrophys.*, 322:431, 1997.
- [DFS⁺60] H. Diamond, R.R. Fields, C.C. Stevens, M.H. Studier, S.M. Fried, M.G. Inghram, D.C. Hess, G.I. Pyle, J.F. Mech, W.M. Manning, A. Ghiorso, S.G. Thompson, G.H. Higgins, G.T. Seaborg, C.I. Browne, H.L. Smith, and R.W. Spence. Heavy isotope abundances in mike thermonuclear device. *Phys. Rev.*, 119:2000, 1960.
- [DH65] D.W. Dorn and R.W. Hoff. Spontaneous fission in very neutron-rich isotopes. *Phys. Rev. Lett.*, 14(12):440, 1965.
- [EFS96] J. Ellis, B.D. Fields, and D.N. Schramm. Geological isotope anomalies as signatures of nearby supernovae. *Astro. Phys.*, 470:1227, 1996.

- [Eva94] A. Evans. *The dusty universe*. Ellis Horwood series in science and technology. John Wiley, 1994.
- [FCKH88] N.S. Fisher, J. Kirk Cochran, S. Krishnaswami, and H.D. Livingston. Predicting the oceanic flux of radionuclides on sinking biogenic debris. *Nature*, 335:622, 1988.
- [FCM⁺97] L.K. Fifield, A.P. Clacher, K. Morris, S.J. King, R.G. Cresswell, J.P. Day, and F.R. Livens. Accelerator mass spectrometry of the planetary elements. *Nucl. Instr. and Meth. B*, 123:400, 1997.
- [FDG⁺99] P.C. Frisch, J.M. Dorschner, J. Geiss, J.M. Greenberg, E. Grün, M. Landgraf, P. Hoppe, A.P. Jones, W. Krätschmer, T.J. Linde, G.E. Morfill, W.T. Reach, J.D. Slavin, J. Svestka, A.N. Witt, and G.P. Zank. Dust in the local interstellar wind. *Astrophys. J.*, 525:492, 1999.
- [Fly97] G.J. Flynn. Collecting interstellar dust grains. *Nature*, 387:287, 1997.
- [FNHB99] M. Frank, R.K. O’Nions, H.R. Hein, and V.K. Banakar. 60 Ma records of major elements and Pb-Nd isotopes from hydrogenous ferromanganese crusts: Reconstruction of seawater paleochemistry. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 63:1689, 1999.
- [GC93] N. Gehrels and W. Chen. The geminga supernova as a possible cause of the local interstellar bubble. *Nature*, 361:706, 1993.
- [Ger99] U. Gerstmann. Persönliche Mitteilungen, 1999.
- [GGM⁺94] E. Grün, B. Gustafson, I. Mann, M. Baguhl, G.E. Morfill, P. Staubach, A. Taylor, and H.A. Zook. Interstellar dust in the heliosphere. *Astron. Astrophys.*, 286:915, 1994.
- [GKL99] E. Grün, H. Krüger, and M. Landgraf. Dust measurements in the outer solar system. *To appear in proceedings of ESO-workshop „Minor bodies in the outer solar system“*, 1999.
- [Gol78] H. Goldstein. *Klassische Mechanik*. Akademische Verlagsgesellschaft, Wiesbaden, 5th edition, 1978.

- [Gro65] Los Alamos Radiochemistry Group. Production of very heavy elements in thermonuclear explosions-test barbel. *Phys. Rev. Lett.*, 14:962, 1965.
- [HIJ⁺87] N. Hayashi, J. Ishida, A. Jamato, M. Iwai, and M. Kinoshita. Determination of ^{239}Pu , ^{240}Pu and ^{241}Am in environmental samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 115:369, 1987.
- [Hil99] W. Hillebrandt. Persönliche Mitteilungen. 1999.
- [HKP⁺94] G. Herrmann, H.-J. Kluge, G. Passler, N. Trautman, and K. Wendt. Resonanzionisations-Spektroskopie mit Lasern. *Phys. Bl.*, 10:929, 1994.
- [HKV73] E.P. Hardy, P.W. Krey, and H.L. Volchok. Global inventory and distribution of fallout plutonium. *Nature*, 241:444, 1973.
- [HLMR71] D.C. Hoffman, R.O. Lawrence, J.L. Mewherter, and F.M. Rourke. Detection of ^{244}Pu in nature. *Nature*, 234:132, 1971.
- [HM97] Hipparcos-Mission. Online datenbank unter <http://astro.estec.esa.nl/hipparcos/hipcataloguesearch.html>. Hauptseite <http://astro.estec.esa.nl/Hipparcos/hipparcos.html>, 1997.
- [HRS99] P. Hartung, L. Rohrer, and H. Schnitter. Generating volt meter. *Beschleunigerlabor München, Jahresbericht*, 1999.
- [Hug96] D.W. Hughes. Dust from beyond the solar system. *Nature*, 380:283, 1996.
- [Jes91] G. Jeschke. Charakterisierung und Vergleich hydrogenetischer und hydrothermalen Manganerzkrusten vom Pitcairn Hot-Spot (zentraler Südpazifik) und den Gesellschaftsinseln anhand hochauflösender geochemischer Spurenanalytik. Diplomarbeit, Christian-Albrechts-Universität Kiel, 1991.
- [KKF⁺99] K. Knie, G. Korschinek, T. Faestermann, C. Wallner, J. Scholten, and W. Hillebrandt. Indication for supernova produced ^{60}Fe activity on earth. *Phys. Rev. Lett.*, 83:18, 1999.

- [KMS⁺95] A. Kudo, Y. Mahara, D.C. Santry, T. Suzuki, S. Miyara, M. Sugahara, J. Zheng, and J.-P. Garrec. Plutonium mass balance released from the nagasaki A-bomb and the applicability for future environmental research. *Appl. Radiat. Isot.*, 45:1089, 1995.
- [Kni96] K. Knie. *Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarenspeparation in einem dedizierten gasgefüllten Magneten*. Dissertation, Technische Universität München, 1996.
- [LA83] H.D. Livingston and R.F. Anderson. Large particle transport of plutonium and other fallout radionuclides to the deep ocean. *Nature*, 303:228, 1983.
- [LG98] M. Landgraf and E. Grün. In situ measurements of interstellar dust. *Lecture Notes in Physics*, 506:381, 1998.
- [MC90] G.J. Mathews and J.J. Cowan. New insights into the astrophysical r-process. *Nature*, 345:491, 1990.
- [MMS⁺94] G. Meynet, A. Maeder, G. Schaller, D. Schaerer, and C. Charbonnel. Grids of massive stars with high mass loss rates. *Astron. Astrophys. Suppl. Ser.*, 103:97, 1994.
- [MUT⁺99] Y. Muramatsu, S. Uchida, K. Tagami, S. Yoshida, and T. Fujikawa. Determination of plutonium concentration and its isotopic ratio in environmental materials by ICP-MS after separation using ion-exchange and extraction chromatography. *J. Anal. At. Spectr.*, 14:859, 1999.
- [NBFM99] U. Neff, A. Bollhöfer, N. Frank, and A. Mangini. Explaining discrepant depth profiles of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ and $^{230}\text{Th}_{\text{exc}}$ in mn-crusts. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 63:2211, 1999.
- [nds86] *Nuclear Data Sheets*, 49(4):790, 1986.
- [Pas98] J.M. Pasachoff. *Astronomy*. Saunders Golden Sunburst Series. Emily Barrosse, 5th edition, 1998.

- [PKNSE95] G. Pfennig, H. Klewe-Nebenius, and W. Seelmann-Eggebert. *Karlsruher Nuklidkarte*. Druckhaus Haberbeck, 6th edition, 1995.
- [Rö0] W. Rühm. Persönliche Mitteilungen. 2000.
- [RJ86] D.M. Raup and D. Jablonski. *Patterns and processes in the history of life*. Springer-Verlag, Heidelberg, 1th edition, 1986.
- [RMC78] G.C. Reid, J.R. McAfee, and P.J. Crutzen. Effects of intense stratospheric ionisation events. *Nature*, 275:489, 1978.
- [RT71] D. Russel and W.H. Tucker. Supernovae and the extinction of the dinosaurs. *Nature*, 229:553, 1971.
- [Rud74] M.A. Ruderman. Possible consequences of nearby supernova explosions for atmospheric ozone and terrestrial life. *Science*, 184:1079, 1974.
- [Sac96] Helmut Sachsenhauser. Atmosphärischer Transport von Radionukliden. Diplomarbeit, Technische Universität München, September 1996.
- [Sam63] O. Samuelson. *Ion Exchange Separations in Analytical Chemistry*. Almqvist and Wiksell, Uppsala, 1963.
- [Sch88] H. Scheffler. *Interstellare Materie*. Vieweg Verlag, Braunschweig/Wiesbaden, 1988.
- [SMH⁺84] M. Segl, A. Mangini, H.J. Hofmann, M. Nessi, M. Suter, W. Wölfl, G. Friedrich, W.L. Plüger, A. Wiechowski, and J. Beer. ¹⁰Be-dating of a manganese crust from central north pacific and implications for ocean palaeocirculation. *Nature*, 309:540, 1984.
- [Tau74] M. Taube. *Plutonium*. Verlag Chemie GmbH, Weinheim/Bergstrasse, 1974.

- [TBS96] A.D. Taylor, W.J. Baggaley, and D.I. Steel. Discovery of interstellar dust entering the earth's atmosphere. *Nature*, 380:323, 1996.
- [TFK⁺98] K. Takahashi, T. Faestermann, P. Kienle, F. Bosch, N. Langer, and J. Wagenhuber. ^{187}Re - ^{187}Os -cosmochronology and chemical evolution of the solar neighbourhood. *Proceedings of the 9th Workshop on Nuclear Astrophysics, Max-Planck-Institut für Astrophysik*, 1998.
- [TMK83a] F.-K. Thielemann, J. Metzinger, and H.V. Klapdor. New actinide chronometer production ratios and the age of the galaxy. *Astron. Astrophys.*, 123:162, 1983.
- [TMK83b] F.K. Thielemann, J. Metzinger, and H.V. Klapdor. Beta-delayed fission and neutron emission: Consequences for the astrophysical r-process and the age of the galaxy. *Atoms and Nuclei*, 309:301, 1983.
- [UB81] A. Unsöld and B. Baschek. *Der neue Kosmos*. Springer-Verlag, Berlin, 3rd edition, 1981.
- [Urb86] A. Urban. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{41}Ca . Diplomarbeit, Technische Universität München, 1986.
- [vS84] U. von Stackelberg. *Geol. Jahrbuch*, A(75), 1984.
- [vS99] U. von Stackelberg. Persönliche Mitteilungen. 1999.
- [Wal87] M.K. Wallis. Penetration of charged interstellar dust into the solar system. *Mon. Not. R. astr. Soc.*, 227:331, 1987.
- [WBG96] G.J. Wasserburg, M. Busso, and R. Gallino. Abundances of actinides and short-lived nonactinides in the interstellar medium: diverse supernova sources for the r-process. *Astrophys. J.*, 466:109, 1996.
- [WCBW76] R.C. Whitten, J. Cuzzi, W.J. Borucki, and J.H. Wolfe. Effect of nearby supernova explosions on atmospheric ozone. *Nature*, 263:398, 1976.

- [Wis59] L. Wish. Anion exchange behaviour in mixed acid solutions and development of a sequential separation scheme. *J. Anal. Chem.*, 31:326, 1959.
- [WW95] S.E. Woosley and T.A. Weaver. The evolution and explosion of massive stars. II. explosive hydrodynamics and nucleosynthesis. *Astrophys. J.*, 101:181, 1995.
- [Yam82] A. Yamato. An anion exchange method for the determination of ^{241}Am and plutonium in environmental samples. *J. Radioanal. Chem.*, 75:265, 1982.
- [ZMKL94] X.-L. Zhao, M.-J. Nadeau, L.R. Kilus, and A.E. Litherland. The first detection of naturally-occurring ^{236}U with accelerator mass spectrometry. *Nucl. Instr. and Meth.*, B92:249, 1994.

Vielen Dank

- Herrn Prof.H.-J.Körner für die Möglichkeit, diese Arbeit unter seiner Leitung durchzuführen.
- Dr.T.Faestermann für die hervorragende Betreuung, seine kompetente Hilfe in allen Bereichen der AMS und Physik und die immerwährende Bereitschaft zu Diskussionen über die Probleme der Arbeit.
- Dr.G.Korschinek für die hervorragende Betreuung und Ausbildung in der AMS und die immerwährende Bereitschaft und sein Interesse an Diskussionen über die Probleme der Arbeit.
- Dr.K.Knie für seine kompetente und kollegiale Hilfe in allen Bereichen der AMS, für die Hilfe bei den Messungen und die Diskussionen über die Probleme der Arbeit.
- Dipl.Phys.G.Rugel für die Hilfe bei den Messungen, für die Diskussionen und für seinen immerwährenden Überblick über die Programmierung der Datenauswertung.
- Den Mitarbeitern des Radiochemischen Instituts der TU, allen voran Dr.U.Gerstmann, Dr.C.Lierse und R.Lindner für die kompetente Hilfe bei der Entwicklung der chemischen Extraktionsmethode von Plutonium aus Mangankrusten und für ihre Hilfe beim Erlernen der radiochemischen Grundlagen.
- Dr.A.Mangini von der Universität Heidelberg für die Überlassung von Probenmaterial
- Der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffforschung Hannover, allen voran Dr.U.v.Stackelberg, für die Überlassung von Probenmaterial und für die Diskussionen über die Manganerzgenese.
- Dr.N.Frank für die Diskussionen über die Probleme des Einbaues von Aktiniden in Mangankonkretionen.
- Dr.W.Hillebrandt vom Max-Planck-Institut für Astrophysik für die Diskussionen über die Probleme der Entstehung der Aktiniden im r-Prozess.

- Dr.Cayetano Pomar und seinem Team von CEMA/Autoridad Regulatoria Nuclear, für die hervorragende Betreuung meines Aufenthalts in Buenos Aires.
- Den Mitarbeitern des radiochemischen Instituts der Autoridad Regulatoria Nuclear in Buenos Aires/Argentinien für ihre kompetente Hilfe bei der Weiterentwicklung der chemischen Extraktionsmethode.
- W.Carli und seinen Operateuren für die hervorragende Zusammenarbeit bei den Messungen und ihr Interesse an der Arbeit.
- P.Hartung für die schnelle und perfekte Ausführung der Konstruktionszeichnungen der Ionisationskammer
- F.Haftlmeier und dem Werkstattteam für ihre hervorragenden Arbeiten.
- Prof.E.Nolte für die Kaffee- und Diskussionsrunden und die angenehme Zusammenarbeit bei der Erledigung meiner Lehrverpflichtungen.
- Der Rechnergruppe K.Schöffel, R.Lutter und K.Steinberger für die Betreuung der Datenauswertung.
- Den Diplomphysikern T.Huber, V.Lazarev, F.Kubo für die angenehme Arbeitsatmosphäre
- U.Heim für ihre liebenswerte Art, den Alltag im Büro etwas freundlicher zu gestalten.
- Der German-Israeli-Foundation für die Unterstützung dieser Arbeit.
- Dem Deutschen Akademischen Austauschdienst DAAD für die Unterstützung der Weiterentwicklung der chemischen Extraktionsmethode in Argentinien.
- und nicht zuletzt meiner Familie für die Unterstützung während der Zeit der Promotion