

Fakultät für Physik der Technischen Universität München, E15

Kosmogene Produktion von Radionukliden

Florian Reinhard Kubo

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik der Technischen
Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender : Univ.-Prof. Dr. P. Ring

Prüfer der Dissertation : 1. Univ.-Prof. Dr. E. Nolte

2. Univ.-Prof. Dr. H.-J. Körner

Die Dissertation wurde am 18. Juli 2001 bei der Technischen Universität
München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 27. August 2001
angenommen.

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde der Eintrag der kosmogenen Radionuklide ^{26}Al und ^{32}Si in die Atmosphäre der Erde untersucht. Beide Nuklide werden durch Spallationsreaktionen der Höhenstrahlung am atmosphärischen Argon produziert. ^{26}Al wird zusätzlich durch interplanetaren Staub in messbaren Mengen auf die Erde eingetragen. ^{26}Al stellt somit ein Tracernuklid zur Messung des Massenstroms des auf die Erde eingetragenen interplanetaren Staubes dar.

Die ^{26}Al -Aktivierung im interplanetaren Staub wurde mithilfe der mit dem LDEF-Satelliten gemessenen Massenverteilung zu $8,4 \cdot 10^{10}$ ^{26}Al -Atomen pro Gramm Staub berechnet. Aus der Masse des ebenfalls mit der LDEF gemessenen Staubeintrages von 40 kt pro Jahr auf die Erde errechnet sich eine Depositionsrate von $0,21$ ^{26}Al -Atome $\text{m}^{-2} \text{sec}^{-1}$ durch interplanetaren Staub.

Zur Bestimmung der atmosphärischen Produktionsrate wurden am Paul Scherrer Institut Bestrahlungsexperimente durchgeführt. Dabei wurden Argon-Gastargets mit Protonen unterschiedlicher Energie bestrahlt. Aus den damit bestimmten Wirkungsquerschnitten der Reaktion $^{40}\text{Ar}(p,6p9n)^{26}\text{Al}$ wurde die mittlere globale atmosphärische Produktionsrate zu $0,69$ ^{26}Al -Atome $\text{m}^{-2} \text{sec}^{-1}$ errechnet. Zur Bestimmung der breitengradabhängigen Depositionsraten wurde ein atmosphärisches Transportmodell auf Aluminium übertragen.

Über Messungen mit Beschleunigermassenspektrometrie wurden Depositionsraten von ^{26}Al bestimmt. Durch Filtration von antarktischen Eisproben wurde die atmosphärische von der Staubkomponente getrennt. Die gesamte Depositionsrate am Südpol wurde zu $1,1 \pm 0,5$ ^{26}Al $\text{m}^{-2} \text{sec}^{-1}$ bestimmt. Für den Massenstrom des globalen Staubeintrags wurde eine Obergrenze von 79 kt pro Jahr gefunden.

Vorüberlegungen zu Messung an des in der Atmosphäre produzierten ^{32}Si werden diskutiert.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	1
1 Einleitung	7
2 Interplanetarer Staub	11
2.1 Herkunft von interplanetarem Staub	12
2.1.1 Kometen	12
2.1.2 Asteroiden	13
2.2 Bewegung im interplanetaren Raum	14
2.2.1 Gravitation	14
2.2.2 Strahlungsdruck	16
2.2.3 Poynting-Robertson-Effekt	17
2.3 Chemische Zusammensetzung von interplanetarem Staub	19
2.4 Aktivierung des Staubes	20
2.4.1 Die kosmische Strahlung	20
2.4.2 ^{26}Al -Aktivierung von interplanetarem Staub	22
2.5 Eintrag auf die Erde	26
2.5.1 Messung mit der LDEF	26
2.5.2 ^{26}Al -Eintrag durch interplanetaren Staub	26
3 Produktion von ^{26}Al in der Atmosphäre	29
3.1 Abschätzung der atmosphärischen Produktion	29

3.1.1	Semiempirische Produktionsquerschnitte	29
3.1.2	Bestrahlung von flüssigem Argon	30
3.1.3	Messungen in Tiefseesedimenten	30
3.1.4	Renormierung von ^{10}Be -Messungen	30
3.2	Messung des Wirkungsquerschnitts $^{40}\text{Ar}(p,6p9n)^{26}\text{Al}$	31
3.2.1	Die Proton Irradiation Facility	31
3.2.2	Die Protonenbestrahlung	32
3.2.3	Aufbereitung der Proben	32
3.2.4	Messung mit Beschleunigermassenspektrometrie	34
3.2.5	Bestimmung der Wirkungsquerschnitte	36
3.3	Bestimmung der atmosphärischen ^{26}Al -Produktion	36
3.3.1	Neutroneninduzierte Produktion	36
3.3.2	Die atmosphärische Produktion	38
3.4	Bestimmung der ^{26}Al -Depositionsraten	39
3.4.1	Der Aufbau der Erdatmosphäre	39
3.4.2	Das atmosphärische Transportmodell	40
3.4.3	Die ^{26}Al -Depositionsraten	41
4	Produktion von ^{26}Al in der Lithosphäre	45
4.1	Produktionswege	45
4.1.1	Spallation durch Nukleonen	45
4.1.2	Einfang von gestoppten Myonen	46
4.1.3	Reaktionen durch schnelle Myonen	46
4.2	Produktionsraten	47
4.3	Vergleich der einzelnen Beiträge	47
5	Messung in antarktischem Eis	49
5.1	Grundsätzliche Überlegungen	49
5.2	Auswahl der Probenorte	49

5.2.1	Vorüberlegungen zur Probenwahl	49
5.2.2	Orte der Probennahme	50
5.3	Probennahme und -aufbereitung	50
5.3.1	Probennahme	50
5.3.2	Probenaufbereitung	52
5.4	^{26}Al -Eintrag im Antarktischen Eis	53
5.4.1	Messergebnisse	53
5.4.2	Diskussion	54
6	^{32}Si als kosmogener Tracer	57
6.1	Vorteile von ^{32}Si	57
6.2	Eichquelle	58
6.2.1	Neutronenaktivierung	59
6.2.2	Schwerionenbestrahlung	60
6.3	Probenaufbereitung	61
6.4	Isobarenunterdrückung bei der BMS-Messung	62
6.4.1	Isobarenunterdrückung bei der Probenaufbereitung	63
6.4.2	Isobarentrennung in der Ionenquelle	63
6.4.3	Isobarentrennung durch unterschiedliches Bremsvermögen	63
6.4.4	Isobarentrennung im gasgefülltem Magnet	65
	Abbildungsverzeichnis	67
	Tabellenverzeichnis	69
	Literaturverzeichnis	71
	Danksagung	79

Kapitel 1

Einleitung

Zu früheren Zeiten galten Kometen aufgrund ihres unerwarteten Auftauchens und ihres ebenso schnellen Verschwindens als Unheilbringer beziehungsweise Unheilverkünder. Ihre kosmische Natur war lange unbekannt. Selbst Galilei hielt sie für ein atmosphärisches Phänomen, obwohl Tycho Brahe 1577 durch Parallaxenmessung zeigen konnte, dass Kometen „den himmlischen Regionen“ angehören. Die Entdeckung des Gravitationsgesetzes durch Newton erlaubte Halley die Natur der Kometenbahnen zu entschlüsseln [18]. Die Vorhersage der Wiederkehr des nach ihm benannten Kometen für das Jahr 1758 gilt als einer der ersten großen Erfolge der modernen Himmelsmechanik.

Fliegt die Erde auf ihrer Bahn um die Sonne durch eine Kometenbahn, wie zum Beispiel im August durch die des Kometen 1862 III, so kommt es zu großen Meteorstromen mit zum Teil mehreren hundert Meteorfällen pro Stunde. Verglüht ein Meteor nicht in der Atmosphäre und erreicht die Erdoberfläche, bezeichnet man ihn als Meteorit. Diese stellten lange die einzige Möglichkeit dar, extraterrestrisches Material auf der Erde untersuchen zu können. Den größten Beitrag zu der auf die Erde eingetragenen extraterrestrischen Materie bis zu einer Masse von 10^{12} kg [37] liefern jedoch nicht Meteore und Meteorite, sondern interplanetarer Staub, Teilchen mit einem Durchmesser von maximal einigen hundert μm . Durch die geringe Größe werden Staubpartikel beim Eintritt in die Atmosphäre nicht zerstört [42]. Diese Mikrometeorite können in der Atmosphäre, in Tiefseesedimenten oder in Polareis gesammelt werden und stellen eine wichtige Informationsquelle über die Natur extraterrestrischen Materials dar [5].

Um den Massenstrom des auf die Erde einfallenden Staubes zu bestimmen, bietet sich der Nachweis im Staub aktivierter Radionuklide an. Hierbei gelten folgende Auswahlkriterien:

- Das Nuklid sollte eine hinreichend lange Halbwertszeit haben, damit sich im Staub eine messbare Menge anreichern kann.

- Die Halbwertszeit sollte deutlich kleiner als das Alter der Erde sein, um einen primordialen Untergrund zu vermeiden.
- Der Untergrund aus anderen extraterrestrischen und terrestrischen Quellen darf das Signal durch den Eintrag des Staubes nicht überdecken.

Neben ^{53}Mn [74] mit einer Halbwertszeit $T_{1/2} = 3,7 \cdot 10^6$ Jahren treffen diese Kriterien auch auf ^{26}Al , einem β^+ /EC-Strahler mit einer Halbwertszeit von $7,16 \cdot 10^5$ Jahren, zu.

In der Milchstraße wird ^{26}Al bei der Nukleosynthese in Sternen, Novae und Supernovae produziert. Die geschätzte Menge an ^{26}Al in unserer Galaxie liegt bei etwa 4 Sonnenmassen¹ [8]. Die beim Zerfall emittierte charakteristische γ -Linie bei 1,809 MeV und somit die Verteilung von ^{26}Al in der Milchstraße ist mit dem Modul COMPTEL auf dem Gamma Ray Observatory (GRO) der NASA mit hoher Genauigkeit vermessen worden [10]. Ein erhöhter Eintrag an supernovaproduziertem ^{26}Al auf die Erde ist jedoch nur beim Durchqueren einer Schockfront einer Supernovaexplosion zu erwarten. Es liegen jedoch keinerlei Hinweise vor, dass dies momentan der Fall ist. Supernovaproduziertes ^{26}Al stellt keine Quelle für einen Untergrund dar.

Als Ursache für terrestrischen Untergrund kommen zwei Quellen in Frage. In der Lithosphäre der Erde werden durch hadronische und myonische Reaktionen Radionuklide, darunter auch ^{26}Al , erzeugt [23, 25].

In der Atmosphäre wird ^{26}Al ähnlich wie ^{36}Cl [30] durch Spallation am Argon produziert [39]. An Aerosole gebunden nimmt das Aluminium am atmosphärischen Transport teil, bis es als trockener oder feuchter Niederschlag auf der Erdoberfläche deponiert wird.

Soll die Menge des auf die Erde eingetragenen Staubes durch eine ^{26}Al -Messung bestimmt werden, muss also die Stärke des atmosphärischen Untergrundes abgeschätzt werden. Gegebenenfalls muss die Staubkomponente vom atmosphärischen Untergrund abgetrennt werden.

Nachgewiesen wird ^{26}Al entweder durch den Zerfall oder mittels Beschleuniger-massenspektrometrie (BMS).

Der Zerfall wird anhand der 1,809 MeV- γ -Linie – vorzugsweise in Koinzidenz mit den zwei 511 keV-Vernichtungsquanten – detektiert. Der Nachteil dieser Methode ist, dass aufgrund der geringen spezifischen Aktivität lange Messdauern und vergleichsweise große Probenmengen notwendig sind. Beispielsweise ist die Aktivität in einem Milligramm Aluminium mit einem Verhältnis von $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} = 10^{-15}$, entsprechend der Nachweisgrenze von BMS, $A = 0,022 \text{ a}^{-1}$, also unmessbar klein.

¹Die Masse der Sonne ist $M_{\odot} = 1,99 \cdot 10^{30} \text{ kg}$.

Bei BMS wird das Isotopenverhältnis des gesuchten Nuklides zu einer Matrix (meist die stabilen Isotopen des gleichen Elementes) bestimmt. Die notwendige Probenmenge ist dabei im Bereich von einem Milligramm Matrix.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich in folgende Abschnitte:

- In Kapitel 2 wird auf die Herkunft und Zusammensetzung von interplanetarem Staub eingegangen. Zusammen mit der Stärke der kosmischen Teilchenstrahlung wurde die ^{26}Al -Aktivierung berechnet. Die durch den Staub auf die Erde eingetragene Menge an ^{26}Al wird abgeschätzt.
- In Kapitel 3 wird ein Bestrahlungsexperiment zur Bestimmung der für die atmosphärische Produktion von ^{26}Al wichtigen Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{40}\text{Ar}(p,6p9n)^{26}\text{Al}$ beschrieben. Dadurch konnte die globale breitengradabhängige Produktion berechnet werden. Mithilfe eines atmosphärischen Transportmodells wird die ebenfalls breitengradabhängige ^{26}Al -Depositionsrates bestimmt.
- In Kapitel 4 wird die lithosphärische Produktion von ^{26}Al abgeschätzt.
- Im Rahmen dieser Arbeit wurde versucht, das durch interplanetaren Staub eingetragene vom atmosphärischen ^{26}Al zu trennen. In Kapitel 5 werden die grundsätzlichen Überlegungen zur Auswahl der Proben dargestellt. Deren Beschaffung, Aufbereitung und Messung mittels Beschleunigermassenspektrometrie (BMS) wird beschrieben. Die so erzielten Messergebnisse werden dargestellt und diskutiert.
- Ein weiteres Nuklid, welches in der Atmosphäre erzeugt wird ist ^{32}Si . In Kapitel 6 wird auf die Vorteile einer ^{32}Si -Messung eingegangen. Erste Überlegungen zur Herstellung einer Eichquelle werden durchgeführt. Anschließend wird noch das bei Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{32}Si auftretende Problem der Isobarentrennung dargestellt.

Kapitel 2

Interplanetarer Staub

Am Nachthimmel kann unter einem Winkel von 90° – 100° zur Sonne in der Ekliptik ein leicht erhelltes Gebiet beobachtet werden. Dieses wird aufgrund seiner Lage am Himmel als Zodiak- oder Tierkreislicht bezeichnet. Der Ausgangspunkt für das Zodiaklicht ist eine die Sonne umgebende Staubwolke.

Dieser interplanetare Staub wird auch auf die Erde eingetragen. Je nach der Menge kann dies großen Einfluss auf die Erde haben:

- Interplanetarer Staub stellt eine nicht vernachlässigbare Quelle der Elemente auf der Erdoberfläche dar. Insbesondere der für die Entwicklung des Lebens essentielle Kohlenstoff könnte extraterrestrischen Ursprungs sein [1].
- Muller und MacDonald wiesen auf einen möglichen Zusammenhang zwischen der auf die Erde einfallenden Menge an Staub und Schwankungen des Erdklimas hin [56, 57].
- In der Raumfahrt ist die Gefährdung durch Mikrometeorite nicht zu vernachlässigen. Selbst ein nur Millimeter großes Staubkorn kann aufgrund seiner hohen Geschwindigkeit an bemannten oder unbemannten Raumfahrzeugen schweren Schaden anrichten.

Eine Möglichkeit der Messung des Eintrags von interplanetarem Staub auf die Erde stellt der Nachweis von radioaktiven Isotopen dar. Diese werden im Staub durch die kosmische Strahlung produziert. In diesem Kapitel wird auf die Entstehung und Bestrahlungsgeschichte von interplanetarem Staub eingegangen. Die ^{26}Al -Aktivierung des Staubes wird ermittelt und der Massenstrom des auf der Erde eingebrachten ^{26}Al abgeschätzt.

2.1 Herkunft von interplanetarem Staub

Über die Herkunft des interplanetaren Staubes herrschte lange Unklarheit. Ursprünglich galten Kometen und deren Schweife als wichtigste Quelle. Inzwischen gilt es aber als gesichert, dass der Hauptteil des interplanetaren Staubes aus dem Asteroidengürtel zwischen Mars und Jupiter stammt.

2.1.1 Kometen

Kometen stellen die ältesten Objekte im Sonnensystem dar. Die meisten Kometen umlaufen die Sonne auf stark exzentrischen Bahnen. Lediglich einige kurzperiodische Kometen haben annähernd kreisförmige Umlaufbahnen. Dabei handelt es sich aber sicher um Kometen, deren Bahn durch gravitative Störungen der großen Planeten verändert wurde. Die meisten langperiodischen Kometen befinden sich in der sogenannten Oortischen Wolke [59,60], die unser Sonnensystem kugelförmig im Abstand von etwa 50000 AE umgibt¹. Durch kleine Gravitationsstörungen – vermutlich durch vorbeifliegende Sterne – werden gelegentlich einzelne Kometen aus ihrer Bahn geworfen und gelangen in den inneren Bereich des Sonnensystems. Dies und die sphärische Form der Oortischen Wolke erklärt die starke Exzentrizität und die unterschiedlichen Bahnneigungen der Kometenbahnen.

Nach heutiger Vorstellung bestehen Kometen vor allem aus gefrorenen Flüssigkeiten und Gasen (beispielsweise H₂O, CO₂, CO, HCN). In diese sogenannten „schmutzige Schneebälle“ sind feste meteoritische Staubpartikel eingelagert. Nähert sich ein Komet der Sonne, verdampft ein Teil der gefrorenen Materie. Ionisierte Bestandteile werden vom Sonnenwind radial von der Sonne weggetragen und bilden den für Kometen charakteristischen Schweif. Teilweise werden dabei auch Staubkörner mitgerissen. Diese kreisen dann auf Keplerbahnen um die Sonne. Kreuzt die Erde die Bahn eines Kometen, kommt es daher zu regelmäßig wiederkehrenden Meteorströmen. Beispielsweise können die Mai-Aquiriden (Maximum 5. Mai) und die Orioniden (Maximum 19. Oktober) dem Halleyschen Kometen zugeordnet werden.

In aufwendigen numerischen Simulationen wurde jedoch gezeigt, dass Kometen nur einen geringen Beitrag zur Gesamtmenge des auf die Erde nachweisbaren Staubes beitragen können [34]. Kometen und somit auch ihre Bruchstücke haben stark exzentrische Bahnen. Damit ist die Wahrscheinlichkeit nur sehr klein, dass ein Staubteilchen aus einem Kometen von der Erde eingefangen wird. Zudem haben Kometen eine hohe Relativgeschwindigkeit zur Erde. Dadurch verglühen

¹Eine astronomische Einheit ist die Länge der großen Halbachse der Erdbahn, 1 AE = 149,6 · 10⁶ km

die meisten Partikel beim Eintritt in die Erdatmosphäre [42]. Lediglich sehr kleine Teilchen (Durchmesser kleiner als $20 \mu\text{m}$) überstehen den Eintritt unbeschadet.

2.1.2 Asteroiden

Zwischen den Bahnen von Mars (große Halbachse $a = 1,5 \text{ AE}$) und Jupiter ($a = 5,2 \text{ AE}$) befindet sich ein breiter Gürtel kleiner und kleinster Asteroiden. Dieser Gürtel erstreckt sich von etwa $2,2 \text{ AE}$ bis zu etwa $3,4 \text{ AE}$ (siehe Abbildung 2.1).

Über die Entstehung der Asteroiden herrscht immer noch Unklarheit. Vermutlich wurde durch Störungen durch Jupiter die Bildung eines Planeten verhindert. Einen großen Fortschritt der Asteroidenforschung stellt die Landung der Raumsonde NEAR-Shoemaker auf Eros Anfang 2001 dar. Dabei konnten erstmals Daten direkt von der Oberfläche eines Asteroiden geliefert werden [85].

Einteilung

Je nach ihrer Zusammensetzung werden die Asteroiden in verschiedene Klassen eingeteilt. Die wichtigsten hierbei sind:

Klasse C (Kohlig): Die meisten Asteroiden (mehr als 75%) gehören dieser Klasse an. Sie sind sehr dunkel (Albedo $0,03-0,09$), was an ihrem hohen Kohlenstoffgehalt liegt. Sie befinden sich vor allem im äußeren Bereich (Abstand etwa 3 AE zur Sonne) des Asteroidengürtels. Sie enthalten fast kein metallisches Eisen.

Klasse S (Silikat): Diese Klasse ist eher im inneren Bereich des Asteroidengürtels (etwa $2,2 \text{ AE}$ Abstand zur Sonne) dominant. Sie stellt etwa 17% aller bekannten Asteroiden. Sie sind vergleichsweise hell (Albedo $0,10-0,22$). Ihre chemische Zusammensetzung ist metallisches Eisen, vermischt mit Eisen- und Magnesiumsilikaten.

Klasse M (Metallisch): Klasse-M-Asteroiden sind ebenfalls relativ hell (Albedo $0,10-0,18$). Ihre Zusammensetzung wird dominiert von metallischem Eisen. Diese Asteroiden finden sich vor allem in der Mitte des Asteroidengürtels.

Asteroidenfamilien

Trägt man einige wichtige Bahndaten (beispielsweise große Halbachse, Inklination oder Exzentrizität) aller Asteroiden gegeneinander auf, so fallen an einigen Stellen Häufungen auf (siehe Abbildung 2.2) [26]. Nach ihrem Entdecker bezeichnet man

diese als Hirayama-Familien. Benannt werden die einzelnen Familien nach dem jeweils zuerst entdeckten Mitglied. In sich weisen die Hirayama-Familien eine ähnliche chemische Zusammensetzung auf. So gehören etwa die Mitglieder der Themis-Familie zur Klasse C.

Asteroiden als Quelle interplanetaren Staubes

Einen ersten Hinweis, dass auch Asteroiden zum interplanetaren Staub beitragen, lieferte der Infrarotsatellit IRAS (Infrared Astronomical Satellite) der NASA. In der Ebene der Ekliptik und jeweils etwa 10° darunter und darüber wurden im Untergrund des Zodiaklichtes drei relativ schmale Staubbänder entdeckt. Diese Bänder zeigen in ihren Bahndaten große Übereinstimmung mit denen der großen Hirayama-Familien Eos, Koronis und Themis [9].

Produziert wird der Staub durch Kollision einzelner Asteroiden untereinander. Diese werden vor allem aufgrund von Bahnstörungen durch den Planeten Jupiter ausgelöst. Bei diesen Zusammenstößen werden Bruchstücke in unterschiedlichsten Größen erzeugt. Im Allgemeinen bewegen sich die Bruchstücke weiter auf den ursprünglichen Bahnen der Mutterkörper. Bei kleineren Stücken ist der Einfluss der Sonnenstrahlung nicht mehr vernachlässigbar. Vor allem aufgrund des Poynting-Robertson-Effekts (siehe Abschnitt 2.2.3) werden die Teile in das Innere des Sonnensystems transportiert.

Ob der Staub durch gleichmässige Erosion kleiner Asteroiden (das sogenannte Gleichgewichtsmodell) oder durch Zerstörung einiger weniger großer Asteroiden (das sogenannte Katastrophenmodell) produziert wird ist dabei ungeklärt [19].

2.2 Bewegung im interplanetaren Raum

2.2.1 Gravitation

Gemäß dem Newtonschen Gravitationsgesetz wirkt auf einen Körper der Masse m im Abstand R zu einem Zentralkörper der Masse M die Gravitationskraft F_G

$$F_G = \frac{G \cdot m \cdot M}{R^2}. \quad (2.1)$$

Die Körper mit der Masse m bewegen sich auf einer Ellipse in deren einem Brennpunkt sich der Zentralkörper mit der Masse M befindet² (erstes Keplersches

²Dies gilt genau genommen nur bei $m \ll M$ und hinreichend kleiner Bahngeschwindigkeit

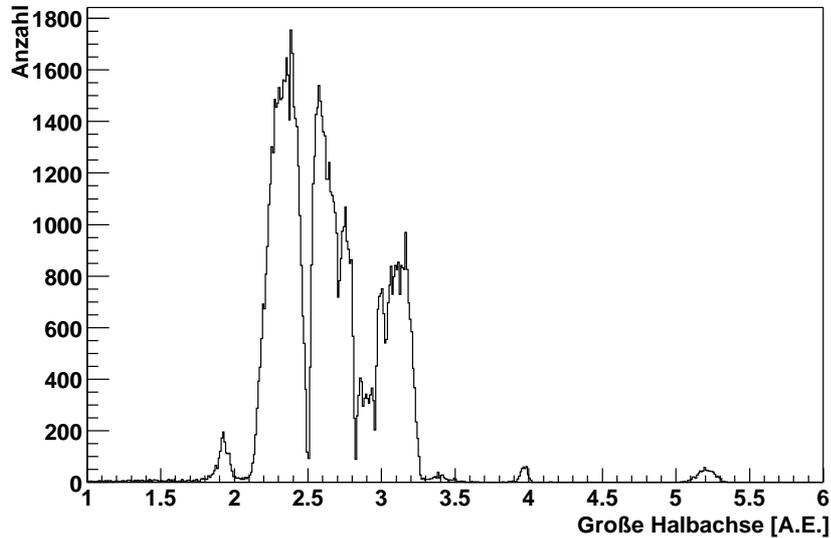


Abbildung 2.1: Häufigkeitsverteilung der bisher bekannten Asteroiden mit großen Halbachsen zwischen 1 und 6 AE. Die Lücken unter anderem bei 2,5 und 2,8 AE haben ihre Ursache in Bahnstörungen durch die großen Planeten, vor allem Jupiter.

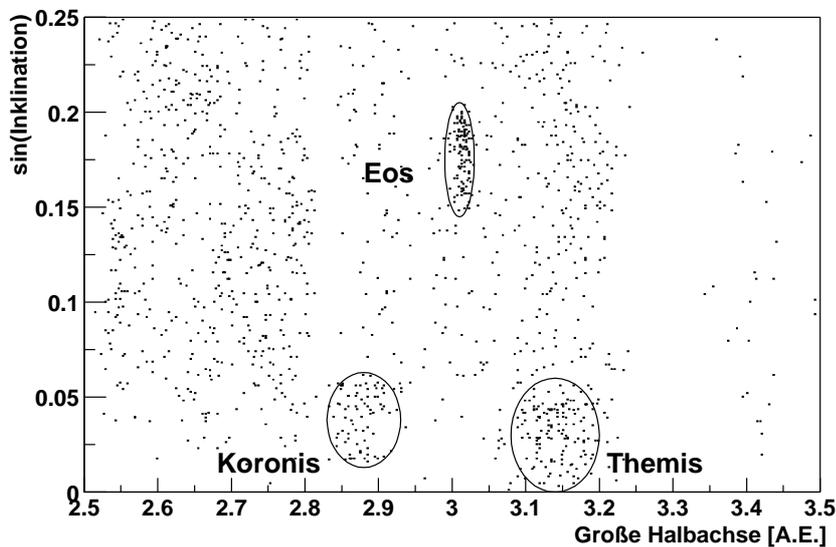


Abbildung 2.2: Die Bahndaten der drei von Hirayama entdeckten Asteroidenfamilien. Benannt werden diese Familien nach dem jeweils ersten entdeckten Mitglied. Verwendet wurde wie in Abbildung 2.1 die Datenbank des Minor Planet Center [84].

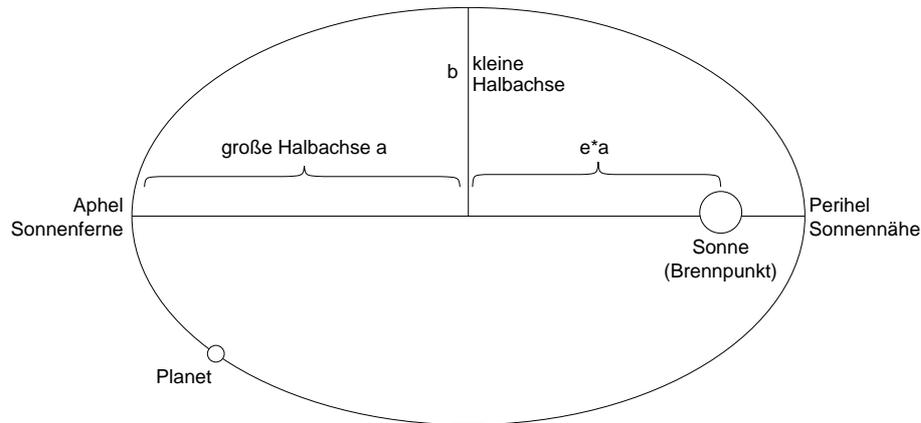


Abbildung 2.3: *Bezeichnungen der Keplerellipse.*

Gesetz). Im Fall des Sonnensystem ist der Zentralkörper die Sonne (Vergleiche Abbildung 2.3).

Bei einer Bahn mit der großen Halbachse a ergibt sich die Umlaufzeit T mit dem dritten Keplerschen Gesetz:

$$T = \sqrt{\frac{2 a^2 \pi}{G \cdot M_{\odot}}}. \quad (2.2)$$

2.2.2 Strahlungsdruck

Die Photonen der Sonne werden an den Staubteilchen sowohl gestreut als auch absorbiert. Durch den hierbei übertragenen Impuls wirkt auf das Teilchen eine Kraft von der Strahlungsquelle weg. Der Strahlungsdruck auf ein kugelförmiges Teilchen ist unabhängig vom jeweiligen Anteil der gestreuten beziehungsweise absorbierten Teilchen [22].

Die Kraft F_R auf ein Staubteilchen mit Radius r und Bahnradius R ist die Energiedichte geteilt durch die Lichtgeschwindigkeit c multipliziert mit der Fläche:

$$F_R = \frac{(1 \text{ AE})^2}{R^2} \cdot \frac{S}{c} \cdot \pi r^2. \quad (2.3)$$

Dabei ist S die Solarkonstante, die Energiedichte der solaren Strahlung im Abstand einer astronomischen Einheit zur Sonne:

$$S = 1,37 \frac{\text{kW}}{\text{m}^2}. \quad (2.4)$$

Die Strahlungsstärke fällt ebenso wie die Gravitation mit R^{-2} ab. Dadurch ist das Verhältnis der durch den Strahlungsdruck hervorgerufenen Kraft F_R zur Gravitationskraft F_G vom Abstand unabhängig. Damit der Strahlungsdruck bei einem Staubkorn mit der Dichte ρ die Gravitation gerade aufwiegt, muss es einen Radius

$$r = \frac{3 S (1 \text{ AE})^2}{4 c \rho G M_\odot} \quad (2.5)$$

haben. Für $\rho = 2,5 \text{ g cm}^{-3}$ entspricht dies einem Radius $r = 0,23 \mu\text{m}$. In diesem Fall bewegt sich das Teilchen kräftefrei auf einer Geraden.

Da F_G mit r^3 , F_R jedoch nur mit r^2 steigt, spielt für größere Teilchen der Strahlungsdruck nur noch eine untergeordnete Rolle. Staubteilchen haben typischerweise einen Radius von mehr als $25 \mu\text{m}$ (siehe Abschnitt 2.5.1), die Kraft durch den Strahlungsdruck beträgt dann weniger als 1% der Gravitationskraft.

2.2.3 Poynting-Robertson-Effekt

Der Poynting-Robertson-Effekt beruht auf dem Bahndrehimpulsverlust von Staubteilchen aufgrund der anisotropen Ein- und der isotropen Abstrahlung von Photonen. Die folgende Herleitung für den speziellen Fall einer Kreisbahn wurde aus [12] übernommen.

Ein Staubteilchen auf einer Kreisbahn mit Radius a um die Sonne hat eine Bahngeschwindigkeit

$$v = \sqrt{\frac{G \cdot M_\odot}{a}} \quad (2.6)$$

und somit einen Bahndrehimpuls

$$L = mv \cdot a = m\sqrt{G \cdot M_\odot \cdot a}. \quad (2.7)$$

Aufgrund der Bewegung senkrecht zur Sonnenstrahlung sieht das Staubteilchen die Photonen statt unter einem Winkel $\theta = 90^\circ$ zur Flugrichtung unter einem Winkel θ' einfallen. Dabei gilt

$$\cos \theta' = -\frac{v}{c}. \quad (2.8)$$

Wird das Staubteilchen von einem Photon der Frequenz ν getroffen, wird dabei der Drehimpuls

$$L_\nu = \frac{h\nu}{c} a \cos \theta' = -h\nu \frac{L}{mc^2} \quad (2.9)$$

auf das Teilchen übertragen. Bei einer isotropen Reemission des Photons erfährt das Teilchen im Mittel keine Drehimpulsänderung. Wird das Teilchen vereinfacht als eine Kugel mit Radius r und der Dichte ρ angesehen, so gelten mit der Bezeichnung

$$\alpha = \frac{3L_\odot}{16\pi c^2 r \rho} \quad (2.10)$$

folgende Beziehungen³:

$$\frac{dL}{dt} = -\alpha \cdot \frac{L}{a^2} \quad (2.11)$$

$$\text{beziehungsweise} \quad \frac{da}{dt} = -\frac{2\alpha}{a}. \quad (2.12)$$

Durch Integration ergibt sich die Zeitdauer Δt , die ein Staubteilchen benötigt, um von einem Bahnradius a_0 bis zu einem Bahnradius a_f zu spiralen:

$$\Delta t = \frac{1}{4\alpha} (a_0^2 - a_f^2). \quad (2.13)$$

Im Falle der Erde ($a_f = 1$ AE) ist die Flugzeit somit (a_0 in AE)

$$\Delta t = 6,93 \cdot 10^5 \frac{\text{m}^2 \cdot \text{a}}{\text{kg}} \cdot r \cdot \rho (a_0^2 - 1). \quad (2.14)$$

Eine allgemeine, störungstheoretische Herleitung stammt von Poynting und Robertson [66]. Betrachtet wird ein Staubteilchen auf einer elliptischen Keplerbahn mit großer Halbachse a , kleiner Halbachse b und Exzentrizität $e = \sqrt{a^2 - b^2}/a$. Mit den gleichen Bezeichnungen wie oben gilt dann

$$\frac{da}{dt} = -\frac{\alpha(2+3e^2)}{a(1-e^2)^{\frac{3}{2}}} \quad \text{und} \quad (2.15)$$

$$\frac{de}{dt} = -\frac{5\alpha e}{2a^2(1-e^2)^{\frac{1}{2}}}. \quad (2.16)$$

³ $L_\odot = 3,85 \cdot 10^{26}$ Watt ist die Leuchtkraft der Sonne

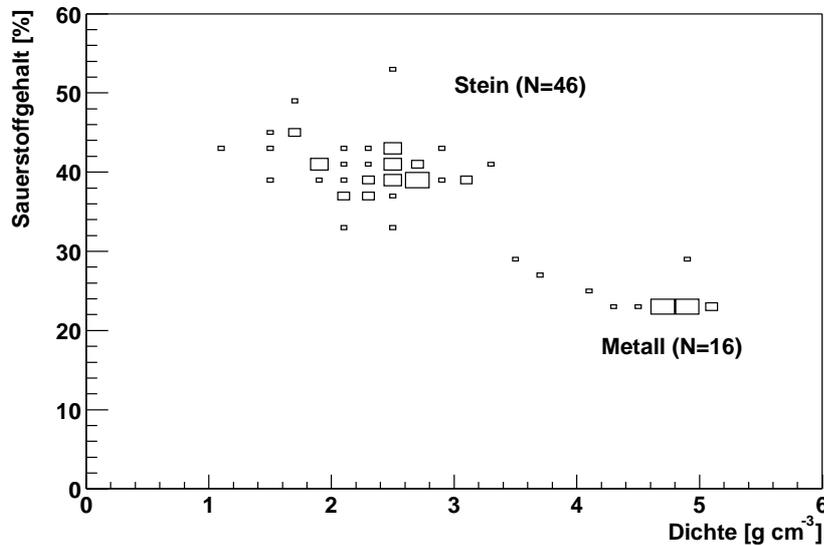


Abbildung 2.4: Dichteverteilung und Sauerstoffgehalt der in [91] untersuchten Staubpartikel. Man erkennt zwei Komponenten (Gestein und Metall) im Mengenverhältnis von etwa 3:1.

Unter der Randbedingung kreisförmiger Bahnen ($e = 0$) vereinfacht sich Gleichung 2.15 zu Gleichung 2.12.

Unter Einfluss des Poynting-Robertson-Effektes verringert sich der Bahnradius. Ein Staubteilchen im interplanetaren Raum fliegt auf einer Spiralbahn langsam in Richtung Sonne. Wie aus Gleichung 2.16 ersichtlich nimmt dabei auch die Exzentrizität ab, die Teilchenbahn wird also immer kreisförmiger.

2.3 Chemische Zusammensetzung von interplanetarem Staub

Um die ^{26}Al -Aktivierung im Staub berechnen zu können, ist es nötig, die Elementzusammensetzung zu kennen. Aufgrund der Herkunft des Staubes sollte die Zusammensetzung ähnlich zu der von Asteroiden sein.

Einen Hinweis auf die Zusammensetzung des Staubes lieferte eine Untersuchung von interplanetaren Staubteilchen in Tiefseesedimenten [91]. Die Dichte und der Sauerstoffgehalt (siehe Abbildung 2.4) zeigt, dass der Hauptteil des Staubes nichtmetallisch ist. Allerdings ist zu beachten, dass eine Übertragung der so festgestellten Mengenverhältnisse (etwa 3:1) nicht ganz trivial ist.

Element	Mg	Si	Fe	Al	Na	Ca	Ni
Anteil [Atom-%]	32,5	31,1	27,3	2,7	2,0	1,8	1,7

Tabelle 2.1: *Chemische Zusammensetzung von kohligen C1-Chondriten [53].*

Auch die IRAS-Messungen deuten auf eine vorrangig nichtmetallische Zusammensetzung hin. Die mithilfe von IRAS entdeckten Staubbänder stammen zum größten Teil von den äußeren Asteroidenfamilien [19, 34], die überwiegend der Klasse C angehören. Für die weiteren Betrachtungen – insbesondere die Berechnung der ^{26}Al -Aktivierung – ist daher als typische Zusammensetzung des interplanetaren Staubes die von kohligen C1-Chondriten gewählt. Die Anteile der wichtigsten Elemente in C1-Chondriten sind in Tabelle 2.1 angegeben. Dabei sind nur die im Meteoritengestein enthaltenen Elemente aufgelistet. Der namensgebende Kohlenstoff (Anteil 2-3%) ist vor allem in den Chondren, kleinen Silikatkugeln, enthalten.

2.4 Aktivierung des Staubes

2.4.1 Die kosmische Strahlung

Ein Körper im interplanetaren Raum ist ionisierender Strahlung ausgesetzt. Neben Gammastrahlung ist dies vor allem eine hochenergetische Partikelstrahlung. Diese Strahlung unterteilt man je nach Herkunft in solare (SCR, solar cosmic rays) und galaktische (GCR, galactic cosmic rays) kosmische Strahlung.

Solare kosmische Strahlung

Durch heftige Konvektion in der Photosphäre (dem Bereich der solaren Atmosphäre, aus der die sichtbare Strahlung kommt) der Sonne kommt es zu Druckschwankungen. Ein kleiner Teil dieser Schallwellen kommt in die äußeren Bereiche der Sonne, in die Chromosphäre und die Korona. In diesen Bereichen niedrigerer Dichte gehen die Schallwellen in Stoßwellen über und heizen hierbei die Chromosphäre auf. In dieser werden dadurch Temperaturen bis zu 10^6 Kelvin erreicht [73]. Bei etwa vier Sonnendurchmesser geht die Korona in die solare Komponente der kosmischen Strahlung über. Zusätzlich zu den Stoßwellen wird die Korona auch durch Magnetfelder aufgeheizt.

In Zeiten hoher Sonnenaktivität treten in der Chromosphäre plötzliche Helligkeitsausbrüche auf, die Sonnenflares. In einem Zeitraum von wenigen Minuten bis zu einigen Stunden werden Energien von bis zu 10^{24} J freigesetzt. Auch hierbei werden Teilchen als SCR in den interplanetaren Raum abgestrahlt.

Die Energie der solaren kosmischen Strahlung liegt unterhalb von 1 GeV, wobei schon ab 100 MeV der Fluss stark abnimmt. Zur Parametrisierung des differentiellen Flusses wurde von Freier und Webber eine Exponentialfunktion der magnetischen Steifigkeit

$$R = \sqrt{E^2 + 2E \cdot E_0} \quad (2.17)$$

vorgeschlagen⁴ [15]:

$$\frac{dJ(R)}{dR} = J_0 \exp\left(-\frac{R}{R_0}\right). \quad (2.18)$$

Die Parameter

$$J_0 = 3,0 \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1} \text{ MV}^{-1}$$

und $R_0 = 98 \text{ MV}$

wurden an Hand von Messungen der Aktivierung von Mondgestein [63] bestimmt. Das Energiespektrum ist in Abbildung 2.5 dargestellt.

Im interplanetaren Staub stellt die SCR wegen der im Vergleich zur GCR wesentlich höheren Teilchenflüsse die Hauptaktivierungsquelle dar. Dies gilt aufgrund der geringen Eindringtiefe der solaren Protonen (etwa 200 mg cm^{-2} für Protonen einer Energie von 10 MeV [90]) jedoch nicht für die Aktivierung von Meteoriten.

Für die Produktion von Radionukliden in der Atmosphäre (siehe Kapitel 3) ist die SCR von geringer Bedeutung. Vor allem durch das Magnetfeld der Erde werden die Teilchen der SCR am Eindringen in die Atmosphäre gehindert. Welcher Teil der Erdatmosphäre in der Höhe h über dem Erdboden durch die kosmische Strahlung ausgeleuchtet wird, kann mit folgender Gleichung für den geomagnetischen Cut-off für senkrecht einfallende Teilchen abgeschätzt werden [83]:

$$\cos^4 \lambda = \frac{R_{\text{vert}}}{14,8 \text{ GeV}/c} \cdot \left(1 + \frac{h}{r_E}\right)^2 \quad (2.19)$$

λ	die geomagnetische Breite
R_{vert}	der vertikale Cut-off
$r_E = 6371 \text{ km}$	der Erdradius

Der Cut-off der SCR ist somit bei $60\text{--}65^\circ$. Lediglich bei außergewöhnlich starken Flares wird das Erdmagnetfeld zeitweilig abgeschwächt und dadurch der geomagnetische Cut-off zu niedrigen Breiten hin verschoben.

⁴ $E_0 = 938 \text{ MeV}$ ist das Energieäquivalent der Ruhemasse eines Protons

Galaktische kosmische Strahlung

Über den Ursprung der GCR wird noch viel spekuliert. Als wahrscheinliche Quellen gelten Supernovae und Materiejets aus schwarzen Löchern. Die bereits hochenergetischen Teilchen werden durch galaktische Magnetfelder weiter beschleunigt. Die höchsten beobachteten Energien liegen bei mehr als 10^{21} eV.

Im Sonnensystem ist die GCR starken Modulationen durch den Sonnenwind unterworfen. Bei Energien von etwa 100 MeV kann je nach Sonnenaktivität der Fluss um eine Größenordnung schwanken. Für die Parametrisierung der GCR in Erdnähe wurde von Castagnoli und Lal [6] folgende Formel vorgeschlagen:

$$\frac{dJ(E, \phi)}{dE} = A \cdot \frac{E(E + 2E_0)(E + m)^{-\gamma}}{(E + \phi)(E + 2E_0 + \phi)} \quad (2.20)$$

mit E in MeV und

$$\begin{aligned} A &= 1,24 \cdot 10^6 \text{ m}^{-2} \text{ sec}^{-1} \text{ MeV}^{-1} \\ \gamma &= 2,65 \\ m &= 780 \cdot \exp(-2,5 \cdot 10^{-4} E) \\ E_0 &= 938 \text{ MeV.} \end{aligned}$$

Die Modulation durch die Sonnenaktivität wird durch den Parameter ϕ beschrieben. Bei ruhiger Sonne ist $\phi = 300$, bei aktiver Sonne $\phi = 900$, im langjährigen Mittel $\phi = 620$ [48]. Das Spektrum der GCR ist ebenfalls in Abbildung 2.5 dargestellt.

Aufgrund ihrer wesentlich höheren Energie vermag die GCR in das Magnetfeld der Erde einzudringen. In der Atmosphäre ist sie die Hauptquelle für kosmogen erzeugte Radionuklide. Für die Aktivierung des interplanetaren Staubes spielt die GCR aufgrund der niedrigeren Flüsse nur eine sekundäre Rolle.

2.4.2 ^{26}Al -Aktivierung von interplanetarem Staub

^{26}Al -Produktion im interplanetaren Staub

Im Rahmen einer Arbeit zur Bestimmung der Aktivierung von Meteoriten wurden an den wichtigsten Targetelementen Protonenbestrahlungen durchgeführt [76]. Die derart bestimmten Wirkungsquerschnitte der für die ^{26}Al -Aktivierung wichtigsten Elementen (Aluminium, Magnesium, Silizium, Calcium und Eisen) sind in

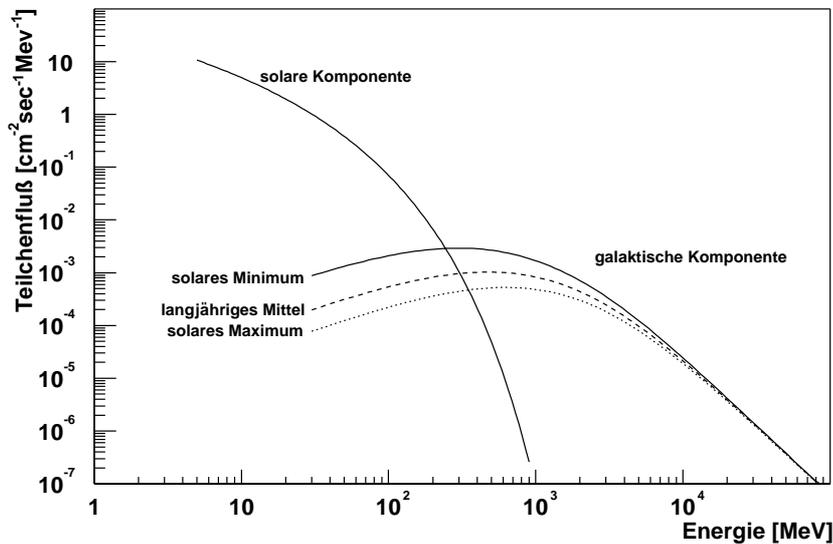


Abbildung 2.5: Die langzeitgemittelten Protonenflüsse der solaren und galaktischen Komponente der kosmischen Strahlung bei 1 AE. Verwendet wurden die Parametrisierungen nach Gleichung 2.18 beziehungsweise 2.20.

Abbildung 2.6 dargestellt. Zur Berechnung der gesamten Produktionsrate wurde durch die Messwerte eine geglättete Funktion gelegt.

Die gesamte ²⁶Al-Produktionsrate aus einem Targetelement ergibt sich durch Integration des Produktes aus Wirkungsquerschnitt und Protonenfluss der solaren kosmischen Strahlung. Für die wichtigsten Elemente sind die derart errechneten Produktionsraten in Tabelle 2.2 zusammengefasst.

Um die gesamte im Staub erzeugte Menge an ²⁶Al zu berechnen, müssen diese Werte mit der jeweiligen Elementhäufigkeit multipliziert werden. Werden die-

Element	Anteil [Atom-%]	Atome [g ⁻¹]	²⁶ Al-Produktionsrate [10 ⁻²⁷ sec ⁻¹]	²⁶ Al [g ⁻¹ sec ⁻¹]
Si	31,1	5,4 · 10 ²¹	1440	7,8 · 10 ⁻³
Al	2,7	4,6 · 10 ²⁰	5840	2,7 · 10 ⁻³
Mg	32,5	5,6 · 10 ²¹	32,0	1,8 · 10 ⁻⁴
Ca	1,8	3,1 · 10 ²⁰	6,80	2,1 · 10 ⁻⁶
Fe	27,3	4,7 · 10 ²¹	0,223	1,0 · 10 ⁻⁶
Summe:				1,1 · 10 ⁻²

Tabelle 2.2: Produktionsraten des im interplanetaren Staub bei 1 AE produzierten ²⁶Al.

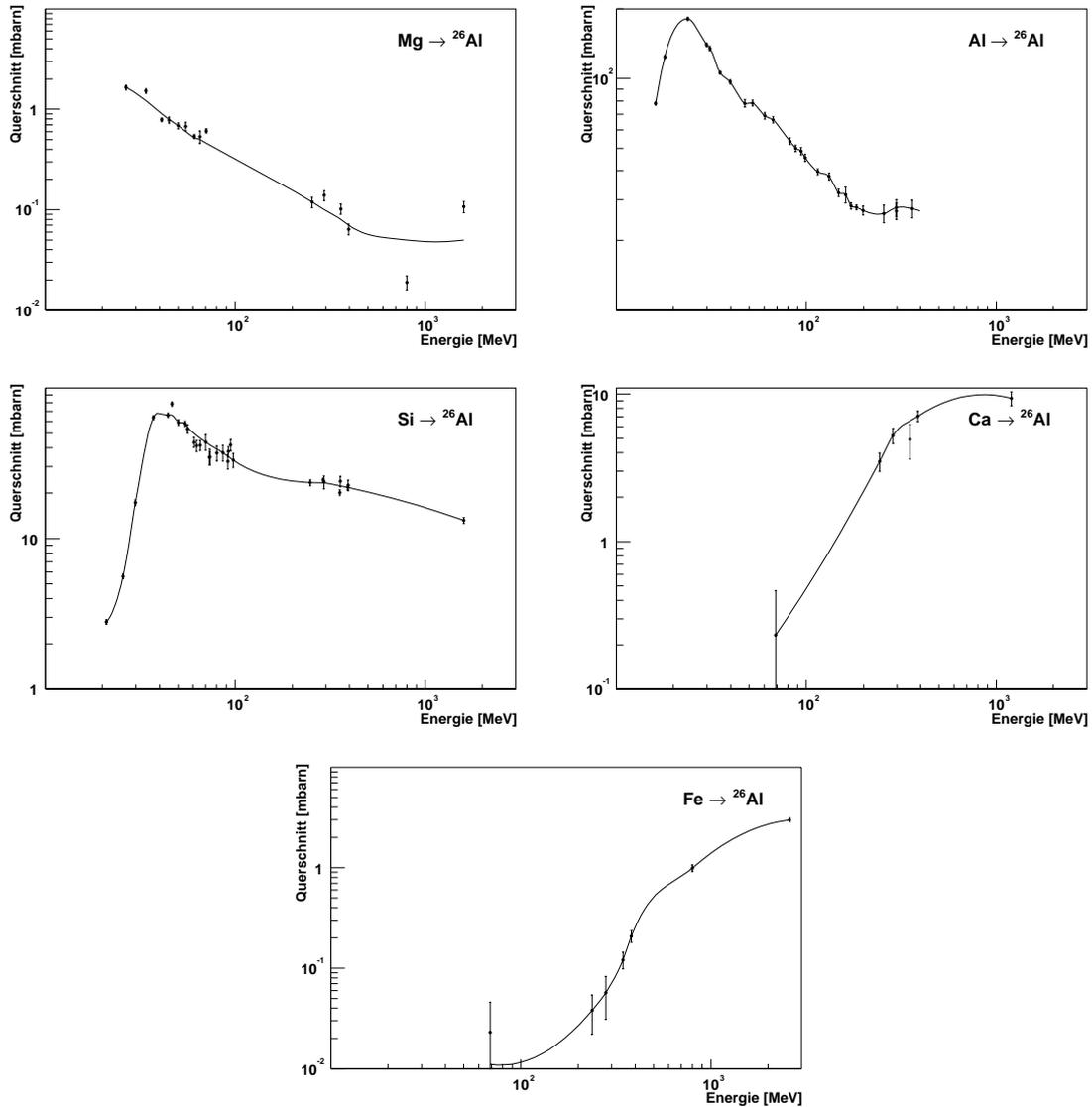


Abbildung 2.6: An den Targetelementen Magnesium, Aluminium, Silizium, Calcium und Eisen gemessene Wirkungsquerschnitte zur Produktion von ^{26}Al [76]. Die durchgezogene Linie entspricht der für die Berechnung der Produktionsraten notwendigen stetigen, etwas geglätteten Funktion.

se Produktionsraten aufsummiert (siehe Tabelle 2.2), ergibt sich im Staub eine Produktionsrate von

$$P_0 = 1,1 \cdot 10^{-2} \text{ } ^{26}\text{Al g}^{-1} \text{ sec}^{-1} \quad \text{bei 1 AE.} \quad (2.21)$$

Sättigungsaktivierung

In Sättigung ist die Aktivität durch den Zerfall von ^{26}Al gleich der Produktionsrate. Damit enthält interplanetarer Staub in Sättigung die Menge von

$$N(\infty) = P_0 \cdot \tau = 3,5 \cdot 10^{11} \text{ } ^{26}\text{Al g}^{-1}. \quad (2.22)$$

Vor Erreichen der Sättigung ist nach der Bestrahlungszeit t die Aktivität $A(t)$ bei konstanter Produktionsrate P_0 gegeben durch

$$A(t) = P_0 \cdot (1 - \exp(-\lambda \cdot t)). \quad (2.23)$$

Tatsächliche Aktivierung

Wie oben gezeigt, entsteht der interplanetare Staub im Asteroidengürtel und spiralt durch den Poynting-Robertson-Effekt langsam in das Innere des Sonnensystems. Dadurch ist die tatsächliche Aktivierung kleiner als im letzten Abschnitt für 1 AE berechnet. Zum einen nimmt der Fluss der solaren Protonen mit dem Quadrat der Entfernung ab. Zum anderen ist die Flugdauer zu kurz, als dass sich die Sättigungsaktivität einstellen kann.

Die Teilchenzahländerung in einem Staubkorn im Abstand R zur Sonne ist gleich der Produktionsrate $P(R) = P_0 \cdot 1 \text{ AE}^2 / R^2$ abzüglich der zerfallenden ^{26}Al -Atome:

$$\frac{dN}{dt} = P_0 \frac{(1 \text{ AE})^2}{R(t)^2} - \lambda N(t) \quad (2.24)$$

Durch Integration über die Zeit kann das Verhältnis der tatsächlichen zur Sättigungsaktivierung bestimmt werden. Das Ergebnis für Staubteilchen unterschiedlicher Radien ist in Abbildung 2.7 dargestellt. Als Produktionsort des Staubes wurde das Zentrum des Asteroidengürtels bei 3,0 AE gewählt. Dies entspricht der großen Halbachse der Eos-Asteroidenfamilie.

2.5 Eintrag auf die Erde

2.5.1 Messung mit der LDEF

Um Daten über den Fluss an Kleinstteilchen im erdnahen Raum und die daraus resultierende Gefährdung von Raumfahrzeugen in erdnahen Umlaufbahnen zu gewinnen, setzte die NASA im April 1984 in einer Höhe von 509 km einen speziellen Satelliten aus. Die Long Duration Exposure Facility (LDEF) war ein 10 m langer Zylinder mit einem Durchmesser von fast 5 m. Sie wurde dabei so stabilisiert, dass ein Ende immer von der Erde abgewandt war. Im Januar 1990 wurde sie in einer Höhe von 325 km geborgen und zu weiteren Untersuchungen auf die Erde gebracht. Aus den Mikrokratern auf der Aluminiumverkleidung der erdabgewandten Seite konnte eine Größenverteilung der interplanetaren Staubteilchen in Erdnähe und daraus der Staubeintrag auf die Erde gewonnen werden [43]. Diese Größenverteilung ist in Abbildung 2.8 dargestellt.

Der totale Masseneintrag durch interplanetaren Staub kann durch Integration dieser Verteilung bestimmt werden. Love und Brownlee [43] errechneten einen Wert von

$$(40 \pm 20) \cdot 10^6 \text{ kg a}^{-1}. \quad (2.25)$$

Der relativ große Fehler rührt vor allem aus der Unsicherheit der Umrechnung von Kratergröße zu Staubgröße.

Die durchschnittliche Aktivierung von interplanetarem Staub kann durch Faltung der Größenverteilung aus Abbildung 2.8 mit der radiusabhängigen Aktivierung aus Abbildung 2.7 errechnet werden. Für ^{26}Al ergibt sich eine Aktivierung von

$$0,24 \cdot P_0 = 2,6 \cdot 10^{-3} \text{ Zerfälle g}^{-1} \text{ sec}^{-1} \quad (2.26)$$

entsprechend einer Menge

$$0,24 \cdot P_0 \cdot \tau = 8,4 \cdot 10^{10} \text{ }^{26}\text{Al g}^{-1}. \quad (2.27)$$

2.5.2 ^{26}Al -Eintrag durch interplanetaren Staub

Nach [42] dringen die meisten Staubteilchen ohne zu schmelzen in die Atmosphäre ein. Sie werden abgebremst und fallen anschließend vom oberen Rand der Stratosphäre zu Boden. Die Zeit, die ein Staubkorn zum Fallen benötigt, lässt

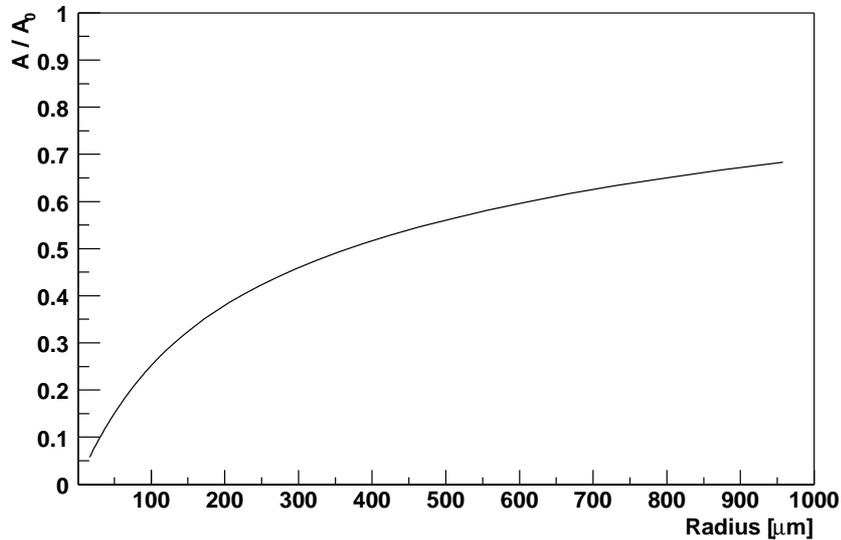


Abbildung 2.7: ^{26}Al -Aktivierung beim Erreichen der Erdbahn im interplanetaren Staub. Aufgetragen ist das Verhältnis der Aktivierung zu Sättigungsaktivierung bei 1 AE als Funktion des Teilchenradius.

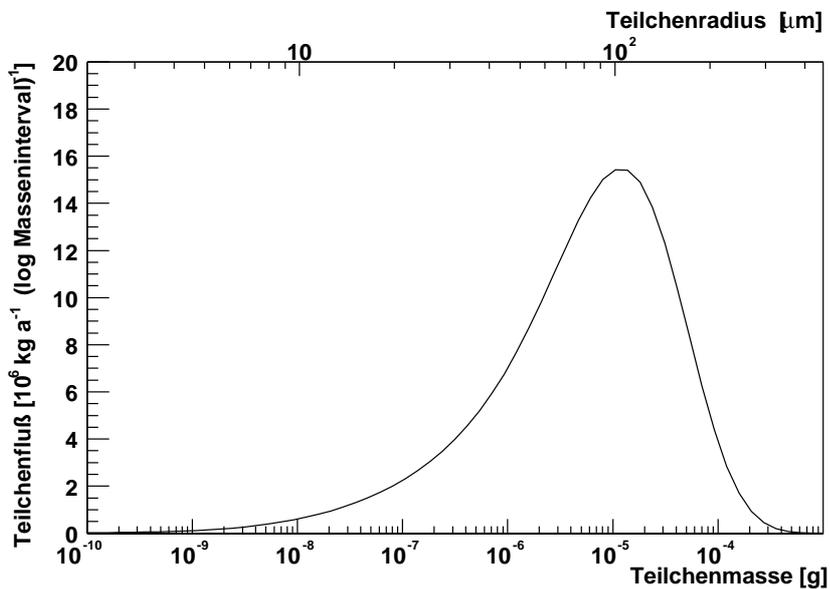


Abbildung 2.8: Die aus der Kraterverteilung auf der LDEF bestimmte Größenverteilung von interplanetarem Staub in Erdnähe. Die Abnahme bei einem Teilchenradius größer als $100 \mu\text{m}$ wird damit erklärt, dass die Flugzeit der Teilchen vom Asteroidengürtel zur Erde länger als die mittlere Stoßdauer wird.

sich mit der Formel von Stokes-Cunningham berechnen. Die Reibungskraft F_R auf ein kugelförmiges Teilchen mit Radius r und der Geschwindigkeit v ist

$$F_R = -\frac{6\pi\eta r v}{1 + \beta\frac{\lambda}{r}}. \quad (2.28)$$

Dabei ist

λ	mittlere freie Weglänge der Luftmoleküle
β	Korrekturfaktor der Form $\beta = 1,26 + 0,40 \cdot \exp(-1,10\frac{r}{\lambda})$
η	dynamische Zähigkeit der Luft.

Die Fallzeit errechnet sich, in dem die Gewichtskraft gleich der Reibungskraft gesetzt wird. Vom oberen Ende der Stratosphäre sedimentieren Staubteilchen innerhalb weniger Stunden bis Tage auf die Erdoberfläche.

Die Erde hat eine Oberfläche von $5,10 \cdot 10^{14} \text{ m}^2$. Unter der Annahme, dass der interplanetare Staub gleichmässig auf die Erde eingetragen wird, bedeutet dies einen durchschnittlichen Fluss ϕ von

$$\begin{aligned} \phi &= \frac{40 \cdot 10^9 \text{ g a}^{-1} \cdot 8,4 \cdot 10^{10} \text{ }^{26}\text{Al g}^{-1}}{5,10 \cdot 10^{14} \text{ m}^2} = 6,6 \cdot 10^6 \text{ }^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ a}^{-1} \\ &= 0,21 \text{ }^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}. \end{aligned} \quad (2.29)$$

Nachgewiesen wird ^{26}Al mittels Beschleunigermassenspektrometrie (siehe Abschnitt 3.2.4). Dazu wird eine Probe mit einem ^{26}Al -freien Träger vermennt und das Verhältnis $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ gemessen. Die Nachweisgrenze liegt bei $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} = 10^{-14}$. Bei einer typischen Trägermenge von $1,0 \cdot 10^{20}$ ^{27}Al -Atomen entspricht dies einer Probenmenge, die auf einer Fläche von $0,15 \text{ m}^2$ über ein Jahr gesammelt wurde.

Kapitel 3

Produktion von ^{26}Al in der Atmosphäre

Der bei weitem wichtigste atmosphärische Produktionsweg für ^{26}Al ist Spallation an Argon. Trockene Luft enthält 0,93 Volumenprozent Argon. Zur Bestimmung der Menge des produzierten ^{26}Al wurde der $^{40}\text{Ar}(p,6p9n)^{26}\text{Al}$ -Produktionsquerschnitt¹ am Paul-Scherrer-Institut gemessen. Mittels Monte-Carlo-Rechnungen sollte der Querschnitt der Reaktion $^{40}\text{Ar}(n,5p10n)^{26}\text{Al}$ bestimmt werden. Daraus läßt sich die kosmogene Produktion berechnen. Mithilfe eines atmosphärischen Transportmodells können Breitengradabhängige ^{26}Al -Depositionsraten bestimmt werden.

3.1 Abschätzung der atmosphärischen Produktion

3.1.1 Semiempirische Produktionsquerschnitte

Eine erste Abschätzung der Menge des atmosphärisch produzierten ^{26}Al stammt von Lal und Peters [39]. Der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{40}\text{Ar}(p,6p9n)^{26}\text{Al}$ wurde mittels der semiempirischen Formel von Rudstam [67] errechnet. Damit errechneten sie eine globale mittlere atmosphärische Produktionsrate von $1,4 \text{ }^{26}\text{Al} \text{ m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$.

¹Natürliches Argon besteht zu 99,6% aus dem Isotop ^{40}Ar , die beiden anderen Isotope ^{36}Ar (0,34%) und ^{38}Ar (0,06%) sind nur in Spuren vorhanden.

3.1.2 Bestrahlung von flüssigem Argon

Von Reyss *et al.* [64] wurde erstmals der Wirkungsquerschnitt $^{40}\text{Ar}(p,6p9n)^{26}\text{Al}$ gemessen. Flüssiges Argon wurde mit Protonen der Energien 500, 900 und 3000 MeV bestrahlt, das Aluminium chemisch abgetrennt und die Aktivität mit einem NaI-Zähler bestimmt. Aus den gemessenen Querschnitten wurde eine globale mittlere Produktionsrate von $N = 1,1 \pm 0,3 \text{ }^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ bestimmt.

Bei der Berechnung wurden jedoch sowohl die neutroneninduzierte Reaktion als auch die Reaktion bei niedrigen Energien vernachlässigt.

3.1.3 Messungen in Tiefseesedimenten

Ein Archiv für ^{26}Al stellen Tiefseesedimente dar. Dabei ist zu beachten, dass die Proben weit genug vom Festland entfernt genommen werden, um lithosphärisch *in-situ*-produziertes (siehe Kapitel 4) und erodiertes ^{26}Al zu vermeiden. Erste Messungen wurden von Reys *et al.* durchgeführt [65]. An einem Bohrkern aus dem Philippinenbecken ($23^\circ 07' \text{ N}$, $135^\circ 45' \text{ O}$) wurde mit einem NaI-Zähler der ^{26}Al -Gehalt bestimmt. Mithilfe der Sedimentationsrate wurde eine atmosphärische Produktionsrate zu $0,86 \text{ }^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ berechnet. Der Staubbeitrag wurde dabei als vernachlässigbar angesehen.

Eine spätere BMS-Messung wurde von Wang *et al.* [87] an einem Bohrkern aus dem nordwestlichen pazifischen Becken ($36^\circ 29' \text{ N}$, $162^\circ 07' \text{ O}$) durchgeführt. Um die nur locker an das Gestein gebundene atmosphärische Komponente von *in-situ*-produziertem ^{26}Al abzutrennen, wurde der Bohrkern gemahlen und mit NaOH ausgelaugt. In der Lauge wurde anschließend das $^{26}\text{Al}/\text{Al}$ -Verhältnis mit Beschleunigermassenspektrometrie gemessen. Die derart ermittelte Depositionsrates wurde mit $1,0 \text{ }^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ angegeben.

Atmosphärisches ^{26}Al sedimentiert im Vergleich mit den Austauschzeiten im Ozean relativ schnell [14]. Die Messungen in Tiefseesedimenten geben also nicht einen globalen Mittelwert, sondern einen Wert für die lokale (breitengradabhängige) Produktionsrate an.

3.1.4 Renormierung von ^{10}Be -Messungen

Die ^{26}Al -Depositionsrates lässt sich auch durch Normierung einer ^{10}Be -Messung mit dem atmosphärischen Verhältnis $^{26}\text{Al}/^{10}\text{Be} = 3,6 \cdot 10^{-3}$ [62] abschätzen.

Mit einer atmosphärischen ^{10}Be -Produktionsrate von $201 \text{ }^{10}\text{Be m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ ergibt sich eine atmosphärische ^{26}Al -Produktionsrate von $0,72 \text{ }^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$.

Depositionsrates [$^{26}\text{Al m}^{-2} \text{sec}^{-1}$]	Methode	Gültigkeit	Referenz
1,4	Gerechnete Querschnitte	global	[39, 67]
$1, 1 \pm 0, 3$	Bestrahlung von Argon	global	[64]
0,72	Renormierung ^{10}Be -Messung	global	[62]
0,86	Tiefseesedimente	lokal	[65]
1,0	Tiefseesedimente	lokal	[87]
0,24	Renormierung ^{10}Be -Messung	lokal	[41, 61, 62]

Tabelle 3.1: *Bisherige Rechnungen und Messungen zur Ermittlung der atmosphärischen ^{26}Al -Depositionsrates.*

Im Eis der russischen Vostok-Station ($78^\circ 28'$ Süd) wurde die ^{10}Be -Konzentration zu $87 \cdot 10^3$ ^{10}Be -Atomen g^{-1} gemessen [61]. Mit einer lokalen Schneeakkumulationsrate von $2,4 \cdot 10^4$ $\text{g m}^{-2} \text{a}^{-1}$ [41] ergibt sich somit für Vostok eine ^{26}Al -Depositionsrates von $0,24$ $^{26}\text{Al m}^{-2} \text{sec}^{-1}$.

Die einzelnen Ergebnisse sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst.

3.2 Messung des Wirkungsquerschnitts der Reaktion $^{40}\text{Ar}(\text{p},6\text{p9n})^{26}\text{Al}$

Wie aus Tabelle 3.1 ersichtlich ist, gibt es große Schwankungen bei den bisherigen Messungen zur ^{26}Al -Depositionsrates. Um einen genaueren Wert der globalen atmosphärischen ^{26}Al -Produktion zu bestimmen, wurde im Rahmen dieser Arbeit am Paul-Scherrer-Institut (PSI) in Villigen/Schweiz Argongas mit Protonen im Energiebereich von 100–590 MeV bestrahlt. Aus der Menge des dabei erzeugten ^{26}Al wurden die Produktionsquerschnitte der Reaktion $^{40}\text{Ar}(\text{p},6\text{p9n})^{26}\text{Al}$ in diesem Energiebereich errechnet.

3.2.1 Die Proton Irradiation Facility

Am PSI werden Protonen mit einem Sektorzyklotron auf Energien von 590 MeV beschleunigt. Dabei wird ein maximaler Strahlstrom von 1,5 mA erreicht. Etwa 20 μA werden mit einem Strahlteiler aus dem Hauptstrahl abgetrennt und dem sogenannten Nukleonenareal zugeführt. Dort befindet sich die Proton Irradiation Facility (PIF). Die PIF ist ein Bestrahlungsplatz der europäischen Weltraumagentur ESA. Dort können Satellitenkomponenten auf Strahlungsresistenz und somit Weltraumtauglichkeit getestet werden. Die Energie der Protonen wird durch Abschwächen von den ursprünglichen 590 MeV auf den gewünschten Wert verrin-

gert [21]. Je nach Strahlenergie steht ein Strom von 100–500 pA, entsprechend $(0,6\text{--}3,1)\cdot 10^9$ Protonen pro Sekunde) zur Verfügung.

3.2.2 Die Protonenbestrahlung

Als Target diente gasförmiges Argon, welches in Edelstahlbehälter gefüllt wurde. Verwendet wurden vier Behälter, davon drei mit einem Innendurchmesser von 104 mm. Um eventuelle Verluste durch Strahlaufweitung zu minimieren, wurde zusätzlich eine Kammer mit einem Innendurchmesser von 150 mm konstruiert. Die Kammerlänge betrug bei allen Targetkammern 280 mm. Die Kammern wurden innen vollständig mit Polypropylenfolie ausgekleidet. An dieser binden sich die entstandenen ^{26}Al -Atome elektrostatisch. Die Folien wurden vor dem Einbau mit verdünnter Salzsäure gereinigt. Nach dem Zusammenbau der Bestrahlungskammern wurden diese evakuiert und anschließend mit Argon gefüllt. Zur Beseitigung von Restgasen wurde dieser Vorgang wiederholt. Die genaue Menge an eingefülltem Argon wurde bei den kleinen Kammern durch Wiegen bestimmt. Bei der großen Kammer war dies aufgrund deren großen Gewichtes nicht möglich, die Menge des Argons wurde durch Druckmessung bestimmt. Die Flächenbelegung lag jeweils im Bereich von $2,0\text{--}2,2 \cdot 10^{21}$ Argon-Atomen pro cm^2 .

Die Kammern wurden auf Strahlachse hinter dem Strahlrohrende aufgebaut. Zur Bestimmung der Protonenfluenzen und des Strahlprofils wurden vor und hinter dem Target Drahtkammern positioniert (siehe Abb. 3.1). Die Bestrahlungsdauer wurde mithilfe von semiempirischen Formeln für die Wirkungsquerschnitte [67–70] derart abgeschätzt, dass mit einer Produktion von etwa 10^8 ^{26}Al -Atomen zu rechnen war.

An zwei Kammern wurden Tests zur Bestimmung des Untergrunds – vor allem durch Übersprechen von einer Bestrahlung zur nächsten, aber auch durch eventuelle Aktivierungen des Wandmaterials – durchgeführt. Eine Kammer wurde mit Argon gefüllt und nach einigen Stunden unbestrahlt wieder gelehrt. Die zweite wurde mit Helium gefüllt und anschließend bestrahlt.

3.2.3 Aufbereitung der Proben

Nach der Bestrahlung wurde das Argon über ein Polykarbonat-Filter (Firma Nuclepore, Polykarbonatfilter 0, $2\ \mu\text{m}$) abgepumpt, um eventuell an Aerosole und nicht an den Folien gebundenes ^{26}Al zurückzuhalten. Anschließend wurden die Kammern geöffnet und die Folien entnommen. Diese wurden zusammen mit dem Filter in verdünnte Salzsäure gelegt. In dieser war jeweils etwa 5 mg ^{26}Al -freies Aluminium in Form von Aluminiumnitrat als Träger gelöst. Die Kammern wurden innen mit verdünnter Salzsäure abgewischt. Die Säure wurde ebenfalls zu den

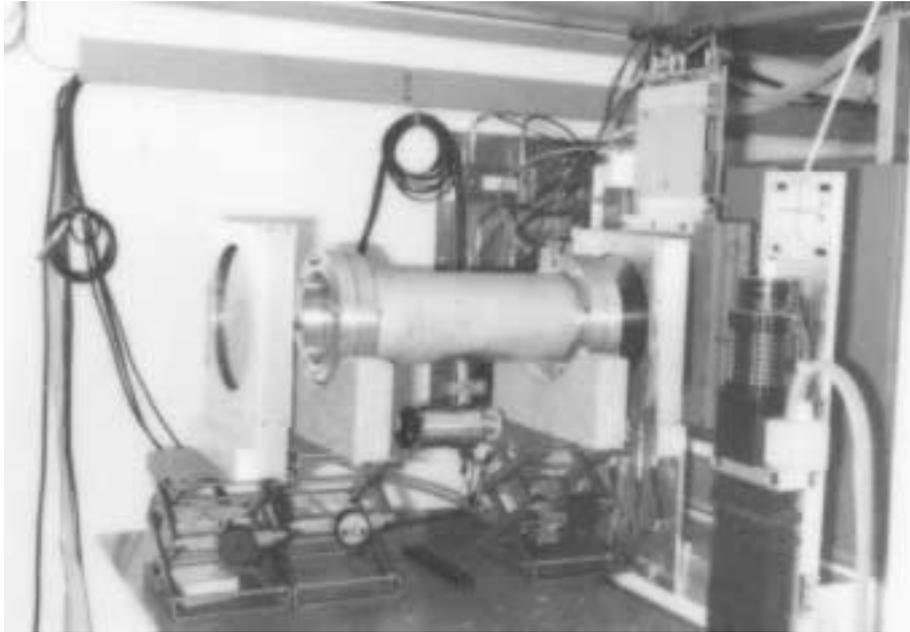
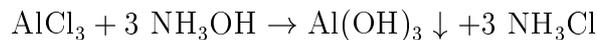


Abbildung 3.1: *Experimenteller Aufbau an der Proton Irradiation Facility am Paul-Scherrer-Institut. In der Bildmitte ist die mit Argongas gefüllte Bestrahlungskammer zu sehen, links und rechts daneben jeweils eine Drahtkammer zur Messung der Protonenfluss und des Strahlprofils. Am rechten Bildrand sind die teilweise ausgefahrenen Abschwächer zur Einstellung der Strahlenergie zu sehen.*

Folien geschüttet. Bei einer Kammer wurden die einzelnen Komponenten (Folie, Säure, Filter) in unterschiedliche Trägerlösung gegeben, um die jeweiligen Anteile zu bestimmen.

Nach einigen Tagen war das ^{26}Al von den Folien und Filter in die Salzsäure in Lösung gegangen. Diese wurde vollständig eingedampft und der Rückstand in konzentrierter Salzsäure gelöst. Das Aluminium lag somit vollständig als Aluminiumchlorid (AlCl_3) vor. Die Lösung wurde mit Ammoniak auf einen pH-Wert von 9 gebracht, dabei geht das Aluminium in unlösliches Aluminiumhydroxid ($\text{Al}(\text{OH})_3$) über [58]:



Das Aluminiumhydroxid wurde durch Zentrifugieren als Aluminiumhydroxidgel ausgefällt. Dieses wurde im Vakuumofen getrocknet und anschließend im Muffelofen bei etwa 900°C zu Aluminiumoxid (Al_2O_3) oxidiert. Um die thermische und elektrische Leitfähigkeit zu erhöhen wurde das Aluminiumoxid mit Silberpulver im Massenverhältnis 4 (Al_2O_3) zu 9 (Ag) gemischt. Anschließend wurde es in einen Kupferprobenhalter gepresst. Das Verhältnis $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ und somit die Menge des erzeugten ^{26}Al wurde

am Garching Tandembeschleuniger mittels Beschleunigermassenspektrometrie gemessen.

3.2.4 Messung mit Beschleunigermassenspektrometrie

Beschleunigermassenspektrometrie (BMS) ist eine empfindliche Methode zum Nachweis langlebiger [16, und dortige Referenzen] und stabiler [46] Nuklide. Grundsätzlich wird das Isotopenverhältnis des gesuchten Nuklides zu einer Matrix (meist die stabilen Isotope) gemessen. Im Fall von Aluminium ist dies das einzige stabile Nuklid, ^{27}Al . Die Nachweisgrenze für dieses Verhältnis kann dabei unter optimalen Bedingungen kleiner als 10^{-15} sein. Ein genereller Überblick über aktuelle Forschungsgebiete und Anwendungen der BMS ist in den Tagungsberichten der letzten BMS-Konferenzen [13, 31, 35] gegeben.

In Abbildung 3.2 ist schematisch der Aufbau der BMS-Anlage am Garching Beschleunigerlabor der TU und der LMU München dargestellt. In einer Ionenquelle werden durch Sputtern mit Zäsium negative Ionen erzeugt. Diese werden über Extraktionselektroden, die auf Hochspannung liegen, extrahiert. Im Injektormagnet wird die gewünschte Masse ausgewählt. Anschließend werden die Ionen zum positiv geladenen Terminal hin beschleunigt. Dort werden sie an einer Stripperfolie positiv umgeladen und durchlaufen das Potenzial ein zweites mal. Beim Strippen werden Moleküle gleicher Masse zerstört. Am Analysiermagnet wählt man die gewünschte magnetische Steifigkeit

$$\rho \cdot B = \frac{\sqrt{2Em}}{q} = \frac{p}{q} \quad (3.1)$$

und somit das Verhältnis der gewünschte Masse und Ladung aus. Zur besseren Unterdrückung des Untergrundes durch Molekülbruchstücke befindet sich hinter dem Tandembeschleuniger ein Wienfilter, das die Geschwindigkeiten nach $v = E/B$ selektiert. Die Ionen werden in einer Bragg-Ionisationskammer nachgewiesen [28]. Die Aufnahme und Verarbeitung der Daten erfolgt mittels des Programmpakets MAR_aBQ_U(MBS and ROOT based online/offline utility) [44] auf Linux-Rechnern.

Ein grundlegendes Problem bei BMS ist der Untergrund durch stabile Isobare, da diese nicht durch eine Massenseparation abgetrennt werden. Im Fall von ^{26}Al ist das einzige stabile Isobar ^{26}Mg . Magnesium bildet im Gegensatz zu Aluminium keine stabilen negativen Ionen, sodass ^{26}Mg bei Verwendung einfach negativ geladener Ionen nicht in den Tandem eingeschossen wird und somit für die Messung von ^{26}Al kein Problem darstellt.

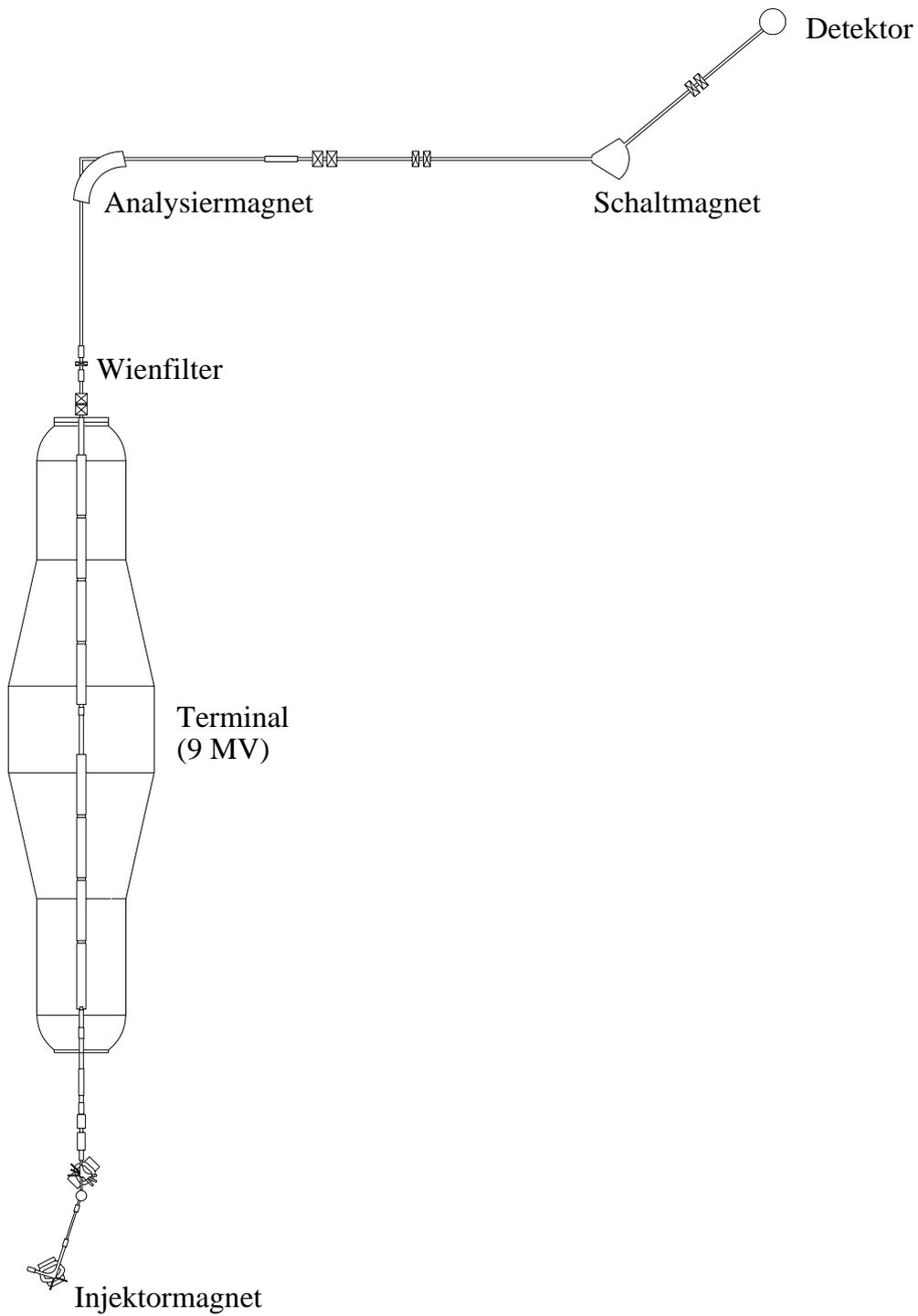


Abbildung 3.2: Das Strahlführungssystem am Garchinger Tandembeschleuniger zum Nachweis von ^{26}Al .

3.2.5 Bestimmung der Wirkungsquerschnitte

Die am Garching Tandembeschleuniger gemessenen Verhältnisse $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ sind in Tabelle 3.2 aufgelistet. Der Untergrund aus den beiden Nullproben in Höhe von $3,5 \cdot 10^{-14}$ ist bei der weiteren Auswertung von den Messergebnissen abgezogen worden.

Die Wirkungsquerschnitte $\sigma(E)$ wurden aus dem gemessenen Verhältnis $R = ^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$, der Masse an zugegebenen Träger m , der Flächenbelegung des bestrahlten Argons N_{Ar} und der Protonenfluenz F berechnet:

$$\sigma(E) = \frac{R \cdot \frac{m \cdot N_A}{m_M}}{F \cdot N_{\text{Ar}}}. \quad (3.2)$$

Dabei ist

N_A die Avogadrokonstante ($6,022 \cdot 10^{23} \text{ mol}^{-1}$)

m_M die molare Masse von Aluminium ($26,98 \text{ g mol}^{-1}$)

Die derart errechneten Wirkungsquerschnitte sind ebenfalls in Tabelle 3.2 aufgelistet. Zusammen mit den von Reys *et al.* an flüssigen Argon gemessenen Querschnitten [64] (siehe Abschnitt 3.1.2) sind sie in Abbildung 3.3 dargestellt.

Die Wirkungsquerschnittsmessungen zeigen ein Maximum bei knapp 300 MeV. Bei Wirkungsquerschnittsmessungen der Reaktion $^{40}\text{Ar}(p,2p3n)^{36}\text{Cl}$ wird ein Maximum bei 95 MeV beobachtet. Zu ^{26}Al werden 10 Nukleonen mehr emittiert. Für die Emission eines Nukleons werden etwa 20 MeV benötigt. Aus dieser Betrachtung wird ein Maximum des Wirkungsquerschnitts zu ^{26}Al bei 295 MeV erwartet, in vollkommener Übereinstimmung zur vorliegenden Messung.

3.3 Bestimmung der atmosphärischen ^{26}Al -Produktion

3.3.1 Neutroneninduzierte Produktion

In der Atmosphäre werden als Sekundärteilchen Protonen und Neutronen erzeugt. Zur Bestimmung der Stärke der neutroneninduzierten Reaktion wurde ein von Gudima *et al.* entwickeltes Cascade-Exciton-Modell [20] verwendet. Hierbei wird sowohl die Stoßkaskade als auch die Abregung des Kerns betrachtet. Gerechnet wurde mittels einem auf diesem Modell beruhenden Programm (CEM95). Nach [45] sind bei Targetmassen schwerer als Aluminium die Ergebnisse um bis zu einen Faktor zwei falsch. Da für ähnliche Reaktionen der Fehler

Energie [MeV]	Verhältnis $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ [10^{-13}]	Wirkungsquerschnitt [mb]
108,9	5,09 ± 0,40	0,35 ± 0,03
152,8	4,83 ± 0,46	0,45 ± 0,06
g 165	4,52 ± 1,03	0,78 ± 0,19
g 192	7,10 ± 1,19	1,06 ± 0,21
203,2	7,16 ± 0,52	1,09 ± 0,14
250,9	7,36 ± 0,65	2,05 ± 0,28
297,5	4,29 ± 0,48	2,23 ± 0,34
297,5	(aufgeteilt)	2,39 ± 0,58
344,4	5,27 ± 0,54	1,20 ± 0,17
g 350	3,20 ± 0,70	0,88 ± 0,21
398,3	5,78 ± 0,45	1,87 ± 0,24
g 400	5,10 ± 1,53	1,51 ± 0,48
495,2	9,55 ± 0,65	2,33 ± 0,29
585,4	7,39 ± 0,84	1,74 ± 0,26
Unbestrahlt	0,33 ± 0,14	
Helium	0,36 ± 0,11	

Tabelle 3.2: Die an den Argongastargets gemessenen Verhältnisse $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ und die daraus berechneten Produktionsquerschnitte. Die bei den Energien mit „g“ gekennzeichneten Werte wurden mit der großen Kammer gemessen.

Energie [MeV]	Verhältnis σ_p/σ_n
150	0,597 ± 0,487
200	0,643 ± 0,246
250	1,39 ± 0,43
300	1,01 ± 0,21
350	1,12 ± 0,21
400	1,17 ± 0,18
500	1,10 ± 0,14
600	1,12 ± 0,12
800	1,09 ± 0,11

Tabelle 3.3: Verhältnis der mit CEM-95 berechneten Verhältnisse der protoninduzierten zu neutroninduzierten Querschnitte für die Produktion von ^{26}Al aus Argon.

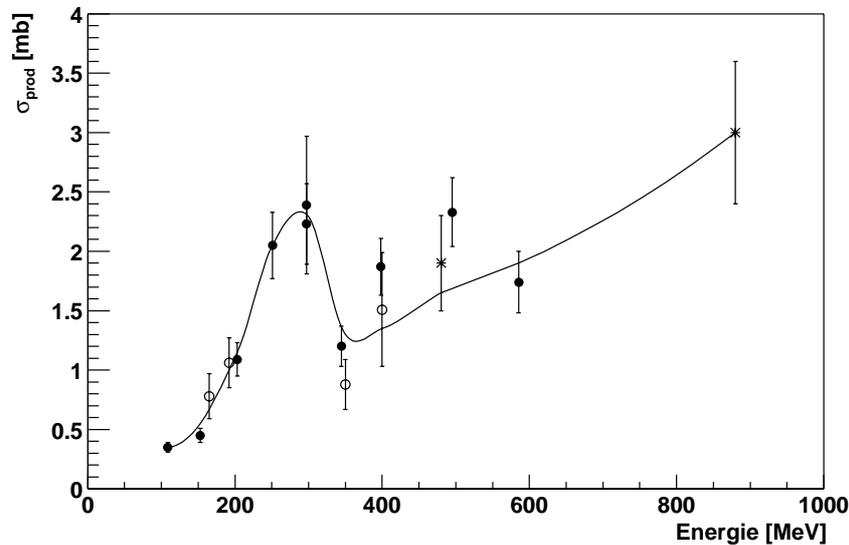


Abbildung 3.3: Die Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{40}\text{Ar}(p,6p9n)^{26}\text{Al}$. Dargestellt sind sowohl die im Rahmen dieser Arbeit mit BMS (● mit kleiner Kammer, ○ mit großer Kammer) als auch die von Reyss et al. [64] an flüssigem Argon gemessenen Werte (*).

etwa gleich groß sein sollte, wurde das Verhältnis aus protonen- zu neutroneninduzierten Querschnitten ermittelt. Diese sind in Tabelle 3.3 im Energiebereich von 150–800 MeV aufgelistet. Zusammen mit den gemessenen Querschnitten der Reaktion $^{40}\text{Ar}(p,6p9n)^{26}\text{Al}$ konnten die gesuchten Querschnitte der Reaktion $^{40}\text{Ar}(n,5p10n)^{26}\text{Al}$ berechnet werden.

3.3.2 Die atmosphärische Produktion

Der atmosphärische Protonen- und Neutronenfluss ist abhängig vom Breitengrad und der Höhe. Durch das Erdmagnetfeld gibt es eine ausgeprägte geomagnetische Breitengradabhängigkeit. Wegen der starken und elektromagnetischen Wechselwirkung mit den Kernen der Atome in der Atmosphäre sind die Flüsse stark von der Höhe abhängig. Von Blinov und Lazarev [3] wurde ein Gleichungssystem zur Berechnung der breiten- und höhenabhängigen Nukleonenflüsse $d\Phi(h, E)/dE$ entwickelt.

Die Gesamtzahl N_{26} der pro Flächeneinheit und Zeiteinheit atmosphärisch erzeugten ^{26}Al berechnet sich somit durch Integration über die Energie und die Höhe:

$$N_{26} = \iint \rho_{\text{Ar}}(h) \frac{d\Phi(h, E)}{dE} \sigma(E) dE dh \quad (3.3)$$

Die von der Höhe h über der Erde abhängige Argonteilchendichte $\rho_{\text{Ar}}(h)$ wurde mit der barometrischen Höhenformel bestimmt.

Die Integration muss jeweils für Neutronen und Protonen getrennt durchgeführt werden. Die berechnete Breitengradabhängige ^{26}Al -Produktion ist in Abbildung 3.5 dargestellt. Bei der Darstellung sind die Breitengrade mit ihrer Fläche auf der Erdkugel normiert worden. Deutlich erkennbar ist die Produktion am Äquator aufgrund des geomagnetischen Cut-Offs (siehe Abschnitt 2.4.1) gegenüber der an den Polen reduziert.

Gemittelt über die ganze Erde ergibt sich eine mittlere Produktion von

$$0,69 \text{ } ^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}. \quad (3.4)$$

3.4 Bestimmung der ^{26}Al -Depositionsraten

In der Atmosphäre produziertes ^{26}Al bindet sich an Aerosole. Aerosole sind nur wenige μm groß [17]. Aus diesem Grund sedimentieren sie deutlich langsamer als die größeren interplanetare Staubkörner. Je nach Größe verbleiben Aerosole mehrere Wochen bis einige Monate in der Stratosphäre. Dieser Zeitraum ist lang genug, um am globalen Luftaustausch teilzunehmen. In der Atmosphäre produziertes ^{26}Al wird daher anders verteilt deponiert als der Produktionsverteilung entspricht.

3.4.1 Der Aufbau der Erdatmosphäre

Die Atmosphäre der Erde wird in verschiedene Schichten unterteilt. Die Unterteilung ergibt sich aus dem Temperaturprofil.

In der Troposphäre (Höhe 0 bis etwa 9-18 km) spielen sich praktisch alle Wetterphänomene ab. ^{26}Al , welches in der Troposphäre erzeugt wird oder in diese gelangt, gelangt innerhalb weniger Wochen aus dieser durch trockene oder feuchte Deposition auf die Erdoberfläche.

In der Stratosphäre (Höhe bis etwa 50 km) hingegen hat man einen positiven Temperaturgradienten. Konvektion zwischen den einzelnen Luftschichten ist weitgehend unterdrückt. Vertikale Austauschprozesse laufen deutlich langsamer ab als in der Troposphäre.

Zwischen Stratosphäre und Troposphäre befindet sich eine Übergangsschicht, die Tropopause. Dadurch dass sich in dieser der Temperaturgradient umkehrt hat sie den Charakter einer Inversionsschicht. Vertikale Austauschprozesse zwischen Troposphäre und Stratosphäre sind stark unterdrückt.

3.4.2 Das atmosphärische Transportmodell

Zur Beschreibung der breitengradabhängigen Verteilung natürlicher und anthropogener Radionuklide in der Atmosphäre wurde an der TU München ein zweidimensionales Transportmodell entwickelt [4, 89].

Die Atmosphäre wurde horizontal in 10° große Breitenradgürtel eingeteilt. Eine weitere Unterteilung in Längengrade war aufgrund der vergleichsweise kurzen Austauschzeiten innerhalb eines Breitengrades für die bisherigen Anwendungen nicht nötig.

Vertikal wurden die einzelnen Breitenradgürtel in jeweils vier Stratosphärenboxen gleicher Masse und eine Troposphärenbox unterteilt. Unterhalb der Troposphäre wurde eine Archivbox eingeführt, aus der kein Rücktransport möglich ist. Diese representieren etwa den Ozean, den Erdboden oder Gletscher (siehe Abbildung 3.4).

Der Austausch zwischen zwei benachbarten Boxen wird im Modell durch zwei Austauschparameter a_{ij} und a_{ji} beschrieben. N_i sei die Anzahl der Tracerteilchen in Box i . Mit einem zeitabhängigen Eintrag $Q_i(t)$ wird der Gehalt in den beiden Boxen durch zwei lineare Differenzialgleichungen beschrieben:

$$\begin{aligned}\frac{dN_i}{dt} &= Q_i(t) - a_{ij} \cdot N_i(t) + a_{ji} \cdot N_j(t) \\ \frac{dN_j}{dt} &= Q_j(t) - a_{ji} \cdot N_j(t) + a_{ij} \cdot N_i(t).\end{aligned}\tag{3.5}$$

Die Austauschraten ergeben sich für den turbulenten Austausch aus der Massenerhaltung. Die Austauschraten zweier benachbarter Boxen stehen dann im Verhältnis der Boxenmassen:

$$\frac{a_{ij}}{a_{ji}} = \frac{M_j}{M_i}.\tag{3.6}$$

Die numerische Behandlung der gesamten Differenzialgleichungen wurde mit einem Runge-Kutta-Verfahren [80] durchgeführt.

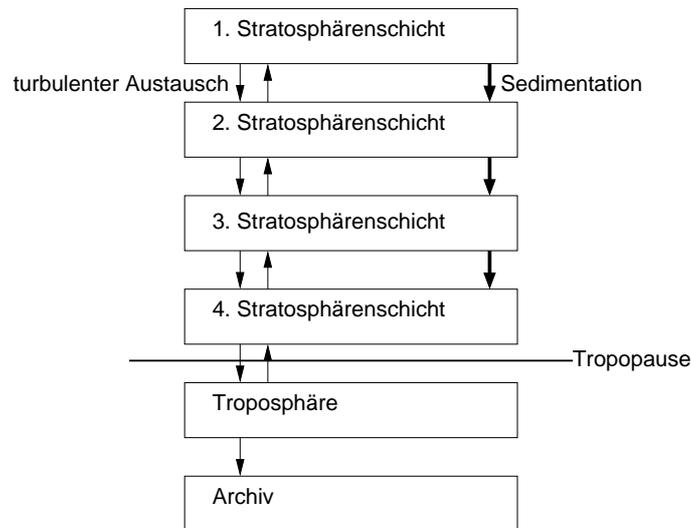


Abbildung 3.4: Die Vertikale Unterteilung eines Breitengradgürtels im Boxenmodell.

Die nicht nach Gleichung 3.6 errechneten Austauschraten a_{ij} wurden meist aus der Literatur übernommen oder ergaben sich aus Plausibilitätsüberlegungen. Nur wenige Parameter mussten durch Eichung – zumeist anhand gemessener Depositionsraten von Spalt- und Aktivierungsprodukten aus den Atombombentests – bestimmt werden. Eine detaillierte Beschreibung des Modells und aller verwendeter Austauschraten liegt in [71] vor.

3.4.3 Die ^{26}Al -Depositionsraten

Zur Bestimmung der ^{26}Al -Depositionsraten wurde der Parametersatz vom Spaltprodukt ^{90}Sr übernommen. Ähnlich wie Aluminium ist dieses vor allem an Aerosole gebunden. Außerdem nimmt es nicht – wie zum Beispiel ^{14}C und ^{36}Cl [75] – am biochemischen Kreislauf teil. Als Eintrag Q_i in die Boxen wurden die aus den Wirkungsquerschnitten errechneten breitengrad- und höhenabhängigen Produktionsraten verwendet.

Da ^{26}Al weder durch Neutronenaktivierung (der Wirkungsquerschnitt der Reaktion $^{27}\text{Al}(n,2n)^{26}\text{Al}$ ist erst oberhalb von 13 MeV messbar [47]) noch durch Spaltung erzeugt wird ist der antropogene Eintrag vernachlässigbar. Um ein Gleichgewicht aus Produktion und Deposition zu erreichen, wurde in dem Modell ein hinreichend langer Zeitraum (einige Hundert Jahre) simuliert. Die sich daraus ergebenden Depositionsraten sind in Abbildung 3.6 dargestellt.

Deutlich erkennbar ist die polare Deposition gegenüber der Produktion vermindert. Dies liegt einerseits an der extrem niedrigen Niederschlagsrate an den Polen,

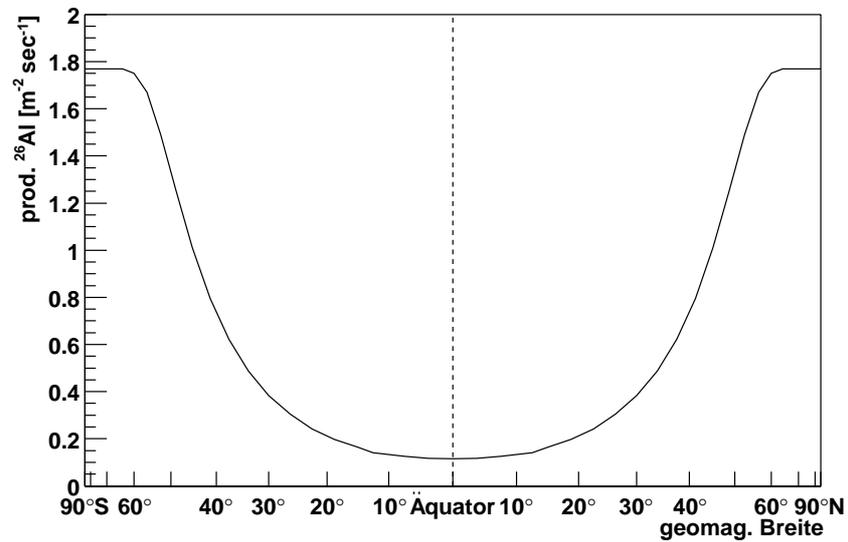


Abbildung 3.5: Geomagnetisch breitengradabhängige Produktionsrate von ^{26}Al .

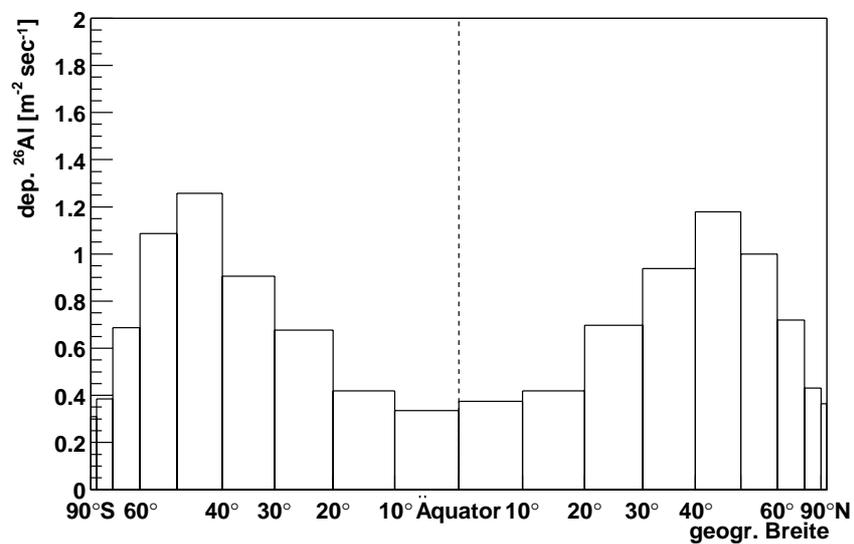


Abbildung 3.6: Die mit dem atmosphärischen Transportmodell bestimmten breitengradabhängigen Depositionsraten von ^{26}Al .

sodass ^{26}Al im wesentlichen trocken als Aerosol deponiert wird. Außerdem ist der Austausch durch die Tropopause an den Polen stark unterdrückt. An den Polen in der Stratosphäre erzeugtes ^{26}Al wird mit hoher Wahrscheinlichkeit vom Pol weg transportiert und wird erst bei mittleren Breitengraden durch die Tropopause verfrachtet.

Das verwendete Boxenmodell ist jedoch bei hohen geographischen Breiten nicht mehr genau. Für ^{90}Sr ergibt die Rechnung am Südpol einen um den Faktor 1,8 höheren Wert als die Messung [86]. Wird das errechnete Ergebnis für ^{26}Al mit diesem Faktor normiert, so ergibt sich für den Südpol eine ^{26}Al -Depositionsrate von

$$0,17 \text{ } ^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}. \quad (3.7)$$

Dieser Wert ist vergleichbar zur ^{26}Al -Depositionsrate aufgrund des Eintrags von interplanetaren Staub von $0,24 \text{ } ^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ (siehe Abschnitt 2.5.2).

Kapitel 4

Produktion von ^{26}Al in der Lithosphäre

4.1 Produktionswege

In der Lithosphäre wird ^{26}Al über höhenstrahlungsinduzierte Reaktionen, hauptsächlich an den Targets Si und Al, produziert. Die Häufigkeiten beider Elemente in der Lithosphäre sind 27,5 und 7,9 Gewichtsprozent [51]. Die Reaktionen sind Spallationsreaktionen der Nukleonenkomponente, Teilchenemission nach Einfang negativer Myonen und Reaktionen mit Schauern, die durch Wechselwirkung schneller Myonen mit der Lithosphäre erzeugt werden.

4.1.1 Spallation durch Nukleonen

Die Intensität der Nukleonenkomponente nimmt unter der Erde annähernd exponentiell ab. Die Produktionsrate durch Spallation in der Tiefe h unter der Erdoberfläche kann daher durch

$$P_{\text{spall}}(h) = P_0 \cdot \exp\left(-\frac{h}{\Lambda_n}\right) \quad (4.1)$$

mit einer Abschirmlänge $\Lambda_n = 1,5 \text{ mwe}^1$ angesetzt werden.

¹Die Tiefe im Gestein wird in Meter Wasseräquivalent (meter water equivalent) angegeben. 1 mwe=100 g/cm².

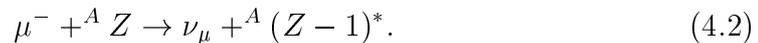
Reaktion			Q [$10^7 \text{ } ^{26}\text{Al m}^{-2}\text{a}^{-1}$]
Nukleonen	$^{28}\text{Si}(x, xpn)^{26}\text{Al}$	$x = n, p$	4,6
gestoppte μ^-	$^{28}\text{Si}(\mu^-, \nu_\mu 2n)^{26}\text{Al}$		0,7
schnelle μ	$^{28}\text{Si}(y, ypn)^{26}\text{Al}$	$y = \gamma, n, p$	1,8
Nukleonen	$^{27}\text{Al}(x, xpn)^{26}\text{Al}$	$x = n, p$	3,2
schnelle μ	$^{27}\text{Al}(y, ypn)^{26}\text{Al}$	$y = \gamma, n, p$	1,3
Summe:			11,6

Tabelle 4.1: Die wichtigsten in-situ-Reaktionen zur Produktion von ^{26}Al und die aufintegrierten Produktionsraten für eine Höhe von 825 m über NN.

4.1.2 Einfang von gestoppten Myonen

Im Gestein gestoppte negative Myonen werden vom Coulombfeld der Atome in hohen Bohrschen Bahnen eingefangen und kaskadieren anschließend schnell ($\approx 10^{-11}$ s) zum myonischen 1s-Niveau. Dort werden sie entweder vom Kern eingefangen oder zerfallen aufgrund ihrer kurzen Lebensdauer von $\tau = 2,2\mu\text{s}$.

Beim Einfang reagieren die Myonen mit dem Kern über schwache Wechselwirkung gemäß



Der dabei entstehende Kern gibt seine Anregungsenergie durch Nukleonemission wieder ab.

Myonen haben eine wesentlich größere Reichweite ($\Lambda_{\mu^-} = 1500$ mwe) als Nukleonen. μ^- -induzierte Reaktionen sind in einer Gesteinstiefe von 10–50 mwe der dominante Produktionsweg für ^{26}Al .

4.1.3 Reaktionen durch schnelle Myonen

Durch hochenergetische Myonen werden im Gestein Teilchen- und elektromagnetische Schauer erzeugt. Über diese Schauer werden ebenfalls Radionuklide erzeugt. Schnelle Myonen haben die größte Reichweite der drei Komponenten, die Abschirmlänge ist $\Lambda_{\mu_f} = 4300$ mwe.

4.2 Produktionsraten

In [24] werden gemessene Wirkungsquerschnitte und Verzweigungsverhältnisse und daraus berechnete Produktionsraten P je Gramm und Jahr und tiefenintegrierte Produktionsraten Q je Quadratmeter und Jahr für die Reaktionen am Targetelement Silizium und die Reaktion von schnellen Myonen am Targetelement Aluminium angegeben.

Der Wirkungsquerschnitt für die Reaktion der Nukleonenkomponente mit Aluminium lässt sich über das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte der Reaktionen von Nukleonen und schnellen Myonen an Silizium aus der Reaktion von schnellen Myonen an Aluminium hochrechnen. In Tabelle 4.1 sind die über die Tiefe aufintegrierten Produktionsraten aufgelistet. Dabei wurde von einer global gemittelten Höhe der Landmassen von 825 m über dem Meeresspiegel ausgegangen.

Die Fläche der nichtvergletscherten Lithosphäre ist $A_L = 1,339 \cdot 10^{14} \text{ m}^2$. Die jährliche Produktionsrate berechnet sich daraus zu

$$\begin{aligned} \sum_i Q_i \cdot A_L &= 11,6 \cdot 10^7 \text{ m}^{-2} \text{ a}^{-1} \cdot 1,339 \cdot 10^{14} \text{ m}^2 \\ &\approx 1,6 \cdot 10^{22} \text{ }^{26}\text{Al a}^{-1}. \end{aligned} \quad (4.3)$$

4.3 Vergleich der einzelnen Beiträge

In Tabelle 4.2 sind der Eintrag von ^{26}Al durch interplanetaren Staub (siehe Kapitel 2), durch Spallation am atmosphärischen Argon (siehe Kapitel 3) und die Produktion in der Lithosphäre zusammengefasst. Dabei ist zu beachten, dass sich der Wert für die lithosphärische Produktion auf die gesamte, über die Tiefe integrierte Produktion bezieht.

Insgesamt werden auf der Erde

$$N_{26,tot} = 3,0 \cdot 10^{22} \text{ }^{26}\text{Al a}^{-1} \quad (4.4)$$

produziert, beziehungsweise eingebracht. Im Gleichgewicht zum Zerfall entspricht dies einer Gesamtmenge von

$$N_{26,tot} \cdot \tau = 3,1 \cdot 10^{28} \text{ }^{26}\text{Al} = 1,3 \text{ t}. \quad (4.5)$$

	Produktion/Eintrag		Anteil
	$[^{26}\text{Al m}^{-2}\text{sec}^{-1}]$	$[10^{22} \text{ }^{26}\text{Al a}^{-1}]$	
Interplanetarer Staub	0,21	0,34	11 %
Atmosphärisch	0,69	1,1	37 %
Lithosphärisch	2,4	1,6	52 %
Summe:		3,0	100 %

Tabelle 4.2: Vergleich der einzelnen Beiträge für die Produktion beziehungsweise den Eintrag ^{26}Al auf die Erde.

Kapitel 5

Messung in antarktischem Eis

5.1 Grundsätzliche Überlegungen

Wie den Kapiteln 2 und 3 gezeigt, ist die ^{26}Al -Depositionsrates auf Grund der atmosphärischen Produktion von gleicher Größenordnung wie die durch interplanetaren Staub. Soll die Menge des Eintrags an interplanetarem Staub anhand einer ^{26}Al -Messung bestimmt werden, so ist es nötig, die beiden Komponenten voneinander zu trennen.

Eine Möglichkeit ergibt sich aus der Tatsache, dass interplanetare Staubkörner einen relativ großen Durchmesser ($> 20\mu\text{m}$, siehe Abbildung 2.8) haben. Atmosphärisch produziertes ^{26}Al ist hingegen an Aerosole gebunden oder im Niederschlag gelöst [2]. Aerosole haben einen Durchmesser von maximal einigen μm [17], der mittlere Durchmesser liegt bei $0,6\mu\text{m}$. Schickt man Niederschlagsproben über geeignete Filter, sollte sich die kosmogene von der Staubkomponente trennen lassen.

5.2 Auswahl der Probenorte

5.2.1 Vorüberlegungen zur Probenwahl

Um den ^{26}Al -Eintrag mit BMS zu bestimmen, gibt man eine bekannte Menge von ^{27}Al (Größenordnung von mg) zu einer Probe und misst das resultierende Verhältnis von ^{26}Al zu ^{27}Al . Im Rahmen dieser Arbeit wurden Niederschlagsproben untersucht. Um ein großes Verhältnis $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ zu erhalten, wählt man Regionen mit sehr kleinen Niederschlagsraten. Dies trifft sowohl für den subtropischen

Wüstengürtel der Erde als auch für die Polarregionen zu. Die Polarregionen haben den Vorteil, dass der Niederschlag mit einfachen Mitteln als Schnee oder Eis gesammelt werden kann und dass dort die Verunreinigung durch erodiertes Gestein sehr niedrig sind.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben sind antarktische Eisproben. Sie wurden in der Nähe der Forschungsstationen St. Kliment Ohridsky auf Livingston Island, Casey am Law Dome und Amundsen-Scott direkt am Südpol genommen.

5.2.2 Orte der Probennahme

Die bulgarische *St. Kliment Ohridsky-Station* liegt auf Livingston Island. Dies ist eine der Südshettland-Inseln, etwa 800 km südöstlich von Kap Hoorn. Die Niederschlagsrate auf Livingston Island ist mit 800 mm pro Jahr relativ hoch, sodass mit einer sehr niedrigen ^{26}Al -Konzentration zu rechnen war. Diese Probe wurde vor allem auf Grund ihrer ersten Verfügbarkeit ausgewählt.

Casey ist eine in der Vincennes-Bai gelegene australische Station. Östlich der Station liegt Law Dome, ein mittelgroßer Eisschild mit einem Durchmesser von etwa 200 km. Der höchste Punkt (110 km landeinwärts) hat eine Höhe von 1390 m. Die bevorzugte Windrichtung ist Osten. Daher gibt es auf der Ostseite des Schildes außergewöhnlich hohe Niederschlagsraten von über 1600 mm pro Jahr. Westlich des Gipfels sinkt die jährliche Niederschlagsmenge stark ab, in einigen Regionen liegt sie nahe bei Null.

Die *Amundsen-Scott-Station* ist eine amerikanische Forschungsstation unmittelbar am geographischen Südpol. Aufgrund der zentralen Lage inmitten des Kontinents ist es dort sehr trocken. Die Niederschlagsrate beträgt nur $(84, 5 \pm 8, 9)$ mm pro Jahr [52].

Die Lage der drei Stationen, die Niederschlagsraten am Ort der Probennahme und die Probenmenge sind in Tabelle 5.1 aufgelistet. In Abbildung 5.1 ist die Lage der Stationen in einer Karte des antarktischen Kontinents eingezeichnet.

5.3 Probennahme und -aufbereitung

5.3.1 Probennahme

Bei Probennahme und -transport wurde darauf geachtet, dass möglichst wenige Verunreinigungen in die Probe kamen. Dies beinhaltet die Verwendung unbenutz-

Station	geog. Breite	geog. Länge	Niederschlag [mm a ⁻¹]	Probenmenge [l]
St. Kliment Ohridsky	62°21' S	60°18' W	800	34
Casey	66°24' S	111°46' O	65	31,5
Amundsen-Scott	90° S	-	84,5 ± 8,9	49,7
Amundsen-Scott	90° S	-	84,5 ± 8,9	12

Tabelle 5.1: Lage der drei Antarktisstationen, die Niederschlagsraten am jeweiligen Ort der Probennahme und die jeweiligen Probenmengen. Von der Amundsen-Scott-Station am Südpol wurden zwei Proben zur Verfügung gestellt.

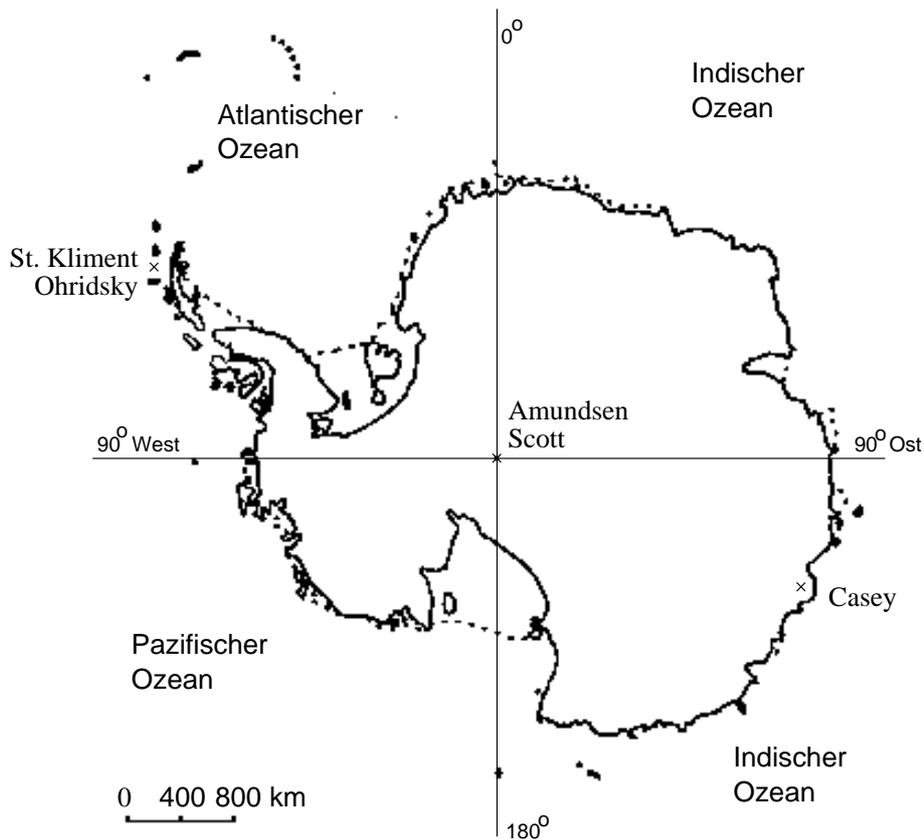


Abbildung 5.1: Lage der drei Stationen (Amundsen-Scott, Casey und St. Kliment Ohridsky) in der Antarktis.

ter Transportbehälter aus Kunststoff und möglichst sauberer und abnutzungsfreier Geräte.

In Livingston Island wurde frischer Schnee nahe eines Berggipfels (Pico Burdick) in 350 m Höhe genommen. Die Stelle ist oberhalb der Permafrostgrenze. Der Schnee wurde mit einer Teflonschaufel in neue Plastikflaschen gefüllt. Anschließend wurden diese zur Station gebracht und der Schnee in den Flaschen geschmolzen.

Die Proben auf Law Dome wurden auf der Westseite des Gipfels genommen, etwa auf halber Strecke zwischen Gipfel und der an der Küste gelegenen Casey-Station. Am Ort der Probennahme liegt die Niederschlagsrate bei 65 mm pro Jahr [40]. Im Gegensatz zu den Proben aus Livingston Island wurde eine Aluminium-Lösung als Träger nach Casey versandt. Diese wurde unmittelbar vor Ort zur Probe gegeben. Dadurch soll in der Lösung ein konstantes Verhältnis $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ geschaffen werden. Wird der Träger erst später hinzugegeben hat sich das ^{26}Al eventuell bereits teilweise an die Behälterwand angelagert.

In der Amundsen-Scott-Station gibt es eine „Clean-ice area“. Das ist ein Areal entgegen der Vorzugwindrichtung zur Station (siehe Abbildung 5.2). Dadurch werden Verunreinigungen durch Abgase der Station vermieden. Von dort wurde mit einer gereinigten Schaufel Schnee in Kanister gefüllt und ebenfalls vor Ort Trägerlösung hinzugegeben.

5.3.2 Probenaufbereitung

Die Eisproben wurden im geschmolzenen Zustand nach Garching transportiert und umgehend weiter aufbereitet. Die Proben aus Casey, St. Kliment Ohridsky und die erste Südpolprobe wurden in Garching aufbereitet, die zweite Südpolprobe an der EAWAG in Dübendorf/Schweiz.

Die Proben wurden zweimal gefiltert. Zur Abtrennung der Staubkomponente wurde ein Papierfilter (Firma Whatman, Cellulosefilter Typ 1) mit einer Porengröße von $18\ \mu\text{m}$ verwendet, zur Abtrennung von Kleinstteilchen ein Aerosolfilter (Firma Sartorius, Celluloseacetatfilter) mit einer Porengröße von $0,45\ \mu\text{m}$. Der Papierfilter wurde verascht, die Asche in ^{26}Al -freier Trägerlösung gelöst. Der Aerosolfilter wurde in mit Träger versetztem Königswasser (zwei Teile 10n Salzsäure und ein Teil 10n Salpetersäure) aufgelöst. Das Filtrat wurde zur Reduzierung der Flüssigkeitsmenge im Rotationsverdampfer blasenfrei auf etwa 50 ml eingengt. Alle drei Lösungen wurden anschließend mit Flußsäure versetzt und komplett eingedampft, um die enthaltenen Silikate abzurauchen.

Der Rückstand wurde in 10n Salzsäure aufgelöst um das Aluminium in Chlorid (AlCl_3) zu überführen. Um bei der BMS-Messung höhere Ionenstrahlströme zu



Abbildung 5.2: Die Amundsen-Scott-Station vom geographischen Südpol gesehen. Das Reineis-Areal (clean-ice area) ist nahe dem Gebäude in der Bildmitte.

erreichen, wurden Verunreinigungen noch mittels Ionentauschersäule (Eichrom 1x8) abgetrennt.

Die weitere Probenaufbereitung (Ausfällen, oxidieren) erfolgte analog zu dem Vorgehen für die am PSI bestrahlten Proben (siehe Abschnitt 3.2.3, Seite 32). Die $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ -Verhältnisse wurden am Garching Tandembeschleuniger mit BMS gemessen.

5.4 ^{26}Al -Eintrag im Antarktischen Eis

5.4.1 Messergebnisse

Die an den Eisproben gemessenen $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ -Verhältnisse sind in Tabelle 5.2 aufgelistet.

Die hohen $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ -Verhältnisse der drei in Garching aufbereiteten Proben (St. Kliment Ohridsky, Casey und der 49,7 l-Probe von der Amundsen-Scott-Station) zeigen, dass es bei der Aufbereitung zu Kontaminationen gekommen ist. Als Quellen kommen im gleichen Labor aufbereitete hochkonzentrierte Proben zur Untersuchung der Aluminium-Biokinetik und eine im Labor gelagerte ^{26}Al -Eichlösung

mit einer $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ -Konzentration von 10^{-7} in Frage. Das Untergrundproblem war der Grund, weshalb die zweite Probe vom Südpol an der EAWAG aufbereitet wurde. Bei dieser entsprach das $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ -Verhältnis der Nullproben dem erwarteten Untergrund von etwa 10^{-14} .

Aus den gemessenen Verhältnissen und der Menge an beigegebenem Träger wurde die Menge der in der Probe enthaltenen ^{26}Al -Atome berechnet. Dabei wurde der jeweilige Untergrund noch nicht beachtet. Die errechneten Werte wurden ebenfalls in Tabelle 5.2 aufgenommen.

Zusammen mit den lokalen Niederschlagsraten wurden die ^{26}Al -Depositionsraten berechnet. Dabei wurde lediglich bei der an der EAWAG aufbereiteten Probe der Untergrund ($^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al} = 1,33 \cdot 10^{-14}$) abgezogen. Die drei anderen Messungen stellen lediglich Obergrenzen dar. Auch diese Werte stehen in Tabelle 5.2.

5.4.2 Diskussion

Für eine Diskussion kann aufgrund des Untergrundproblems nur die an der EAWAG aufbereitete herangezogen werden.

Atmosphärische Komponente

Das Messergebnis der atmosphärischen Komponente ist mit $1,05 \pm 0,44$ ^{26}Al $\text{m}^{-2} \text{sec}^{-1}$ über dem erwarteten Wert von $0,17$ ^{26}Al $\text{m}^{-2} \text{sec}^{-1}$. Diese Probe lag im wesentlichen gelöst vor, der im Aerosolfilter gemessene Wert ist mit Null verträglich.

Zur Diskrepanz zwischen gemessenen und erwarteten Fluss von atmosphärisch erzeugtem ^{26}Al muss der folgende Punkt betrachtet werden. Der im Modell verwendete Parametersatz basiert auf ^{90}Sr -Messungen. Dieses Spaltprodukt wurde vor allem bei den Atombombentests in den 50er und 60er-Jahren des letzten Jahrhunderts produziert und verteilte sich, an Aerosole gebunden, global. Die Explosionsorte lagen dabei für die amerikanischen Tests bei niederen Breiten und für die sowjetische Tests Novaja Zemlja liegt bei hohen Breiten von 74° Nord. Natürliches ^{26}Al wird direkt in der Atmosphäre erzeugt. Wie aus Abbildung 3.5 ersichtlich, ist die Produktion an den Polen maximal. Möglicherweise sedimentiert ^{26}Al schneller und verteilt sich daher weniger als im Modell simuliert. Das Transportmodell berücksichtigt auch nicht lokale Unterschiede in der Zirkulation, wie sie in polaren Gegenden gegeben sind.

Interplanetarer Staub

Eine Aussage über den Staubeintrag ist aufgrund der niedrigen ^{26}Al -Konzentration schwierig. Für den Staubeintrag kann eine Obergrenze – die Nachweisgrenze für Nullmessungen von $(1,33 \pm 0,50) \cdot 10^{14}$ – angegeben werden. Dies entspricht einer Depositionsrate von weniger als

$$0,31 \text{ } ^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}. \quad (5.1)$$

Für den globalen Staubeintrag bedeutet dies einen maximalen Wert von

$$79 \text{ kt a}^{-1}. \quad (5.2)$$

Im Rahmen der Messgenauigkeit ist dieser Wert mit der Messung durch die LDEF von 40 ± 20 kt pro Jahr (siehe Abschnitt 2.5.1) verträglich.

Station	Probe	Träger [mg]	Verhältnis $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ [10^{-14}]	N_{26} [10^6]	Depositionrate [$^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$]
St. Kliment Ohridsky	Gelöst (1)	3,28	$47,4 \pm 11,9$	$34,7 \pm 8,71$	
	Gelöst (2)	3,28	$45,4 \pm 15,3$	$33,2 \pm 11,2$	$25,4 \pm 5,28$
	0,45 μm	3,75	$7,01 \pm 3,34$	$5,87 \pm 2,80$	$4,37 \pm 2,08$
	40 μm	3,00	$1,06 \pm 0,751$	$0,710 \pm 0,503$	$0,53 \pm 0,37$
	Gesamt				$30,3 \pm 5,69$
	Untergrund		$48,7 \pm 22,0$		
Casey	Gelöst	4,5	$95,1 \pm 7,74$	$95,5 \pm 7,77$	$6,24 \pm 0,52$
	0,45 μm	4,5	$21,2 \pm 3,76$	$21,3 \pm 3,78$	$1,39 \pm 0,25$
	40 μm	4,5	$40,6 \pm 9,00$	$40,8 \pm 9,04$	$2,67 \pm 0,59$
	Gesamt				$10,3 \pm 0,83$
	Untergrund		$282 \pm 63,2$		
Amundsen-Scott (49,5 I)	Gelöst	4,5	$96,1 \pm 10,8$	$96,5 \pm 10,8$	$5,20 \pm 0,80$
	0,45 μm	4,5	$21,7 \pm 3,74$	$21,8 \pm 3,76$	$1,17 \pm 0,24$
	40 μm	4,5	$44,5 \pm 4,94$	$44,7 \pm 4,96$	$2,41 \pm 0,37$
	Gesamt				$8,78 \pm 0,91$
	Untergrund		$282 \pm 63,2$		
Amundsen-Scott (12 I)	Gelöst	1,5	$15,7 \pm 5,53$	$5,25 \pm 1,85$	$1,05 \pm 0,44$
	0,45 μm	4,5	$1,16 \pm 0,69$	$1,16 \pm 0,70$	$<0,22 \pm 0,09$
	40 μm	4,5	$1,54 \pm 0,70$	$1,55 \pm 0,70$	$<0,22 \pm 0,09$
	Gesamt				$1,09 \pm 0,53$
	Untergrund		$1,33 \pm 0,50$		

Tabelle 5.2: Mit BMS gemessene Verhältnisse $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ in Polareisproben. Die beiden Messungen „Gelöst“ von Livingston Island sind unterschiedlich aufbereitete Alquote der gleichen Probe, die Menge an Carrier bezieht sich auf die gesamte Probenmenge.

Kapitel 6

Ausblick: ^{32}Si als kosmogener Tracer

6.1 Vorteile von ^{32}Si

Ein Problem bei der Interpretation der ^{26}Al -Messungen im Eis ist die Frage, wie gut die atmosphärische Komponente vom Staub abgetrennt wird. Es wäre daher von Vorteil, ein Nuklid zu untersuchen, das

1. im kosmischen Staub nicht oder fast nicht vorhanden ist
2. in der Atmosphäre hingegen ebenso stark oder wie ^{26}Al produziert wird und
3. sich chemisch ähnlich verhält wie ^{26}Al .

Dieses kann dann als Tracer für die atmosphärische Komponente verwendet werden. Ein möglicher Kandidat – neben ^{10}Be – ist ^{32}Si ($T_{1/2} = 126 \pm 6$ a [7, 11, 27, 36]).

Produktion im Staub

Die Produktion sollte im Staub wesentlich schwächer sein als die von ^{26}Al , da die Produktionskanäle aus Aluminium, Magnesium und Silizium nicht vorhanden sind, weil diese Elemente nur stabile Nuklide mit Massen kleiner als 32 haben. Die Produktion aus den Elementen Calcium und Eisen wurde mit semiempirischen Formeln nach Rudstam [67–69] und nach Silberberg und Tsao [78, 79] abgeschätzt (siehe Abbildung 6.1). Daraus ergab sich, dass die Produktion aus Calcium um den Faktor zwei, die Produktion aus Eisen um den Faktor drei gegenüber ^{26}Al unterdrückt ist. Die Produktionsrate im Staub berechnet sich zu

$$1,2 \cdot 10^{-7} \text{ } ^{32}\text{Si g}^{-1} \text{ sec}^{-1}. \quad (6.1)$$

Entstandenes ³²Si zerfällt deutlich schneller als ²⁶Al. Aufgrund der niedrigen Halbwertszeit sollte ³²Si in Sättigung sein. Wird die Produktion gleich der Zerfallsrate gesetzt, errechnet sich der Anteil an Silizium im Staub zu

$$725 \text{ } ^{32}\text{Si g}^{-1}. \quad (6.2)$$

Bei einem Staubeintrag von 40 kt pro Jahr ergibt sich somit eine terrestrische Depositionsrates von

$$1,8 \cdot 10^{-9} \text{ } ^{32}\text{Si m}^{-2} \text{ sec}^{-1}. \quad (6.3)$$

Dies ist acht Größenordnungen unter dem Wert von $0,21 \text{ } ^{26}\text{Al m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$, welcher für ²⁶Al abgeschätzt wurde.

Produktion in der Atmosphäre

Die Wirkungsquerschnitte der atmosphärischen Reaktionen ⁴⁰Ar(p,5p4n)³²Si und ⁴⁰Ar(n,4p5n)³²Si sind vergleichbar groß wie die entsprechenden zur Produktion von ²⁶Al. Lal und Peters haben mit der Formel von Rudstam eine um 15% höhere Depositionsrates errechnet. Im globalen Mittel entspricht dies einer Rate von

$$0,79 \text{ } ^{32}\text{Si m}^{-2} \text{ sec}^{-1}. \quad (6.4)$$

Chemisches Verhalten in der Atmosphäre

Chemisch verhält sich ³²Si ähnlich wie ²⁶Al. Wie letzteres wird es trocken an Aerosole gebunden deponiert. Liegt das Silizium als Oxid vor, kann es auch feucht als Kieselsäure (H₂SiO₃) in Lösung gehen und wird feucht aus der Atmosphäre ausgewaschen [50].

6.2 Eichquelle

Um ³²Si mit BMS messen zu können, benötigt man eine Eichquelle mit einem bekannten Verhältnis ³²Si/Si. Üblicherweise liegt die Konzentration einer Eichquelle 3-4 Größenordnungen über der Nachweisgrenze. Bei einer Nachweisgrenze von 10⁻¹⁵ [49] sollte eine Eichquelle eine Konzentration von 10⁻¹² bis 10⁻¹¹ haben.

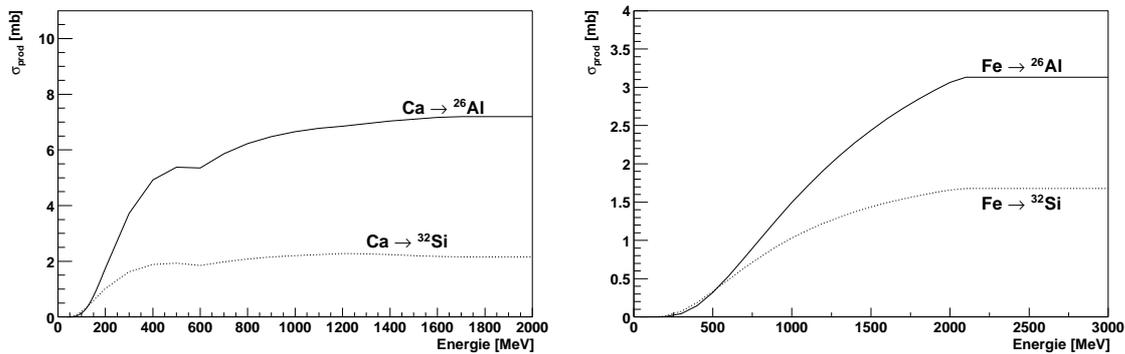


Abbildung 6.1: Mit semiempirischen Formeln berechnete Produktionsquerschnitte für ^{26}Al und ^{32}Si aus den Targetelementen Calcium [78, 79] und Eisen [67–69]. Die ^{32}Si -Produktion aus Eisen ist um den Faktor zwei, aus Calcium um den Faktor drei schwächer.

Zur Produktion gibt es die Möglichkeit der Neutronenaktivierung und der Bestrahlung mit schweren Ionen.

6.2.1 Neutronenaktivierung

Das schwerste stabile Siliziumisotop ist ^{30}Si (Isotopenanteil $N(^{30}\text{Si})/N(\text{Si}) = 3,1\%$). Um ^{32}Si im Reaktor durch Neutronenaktivierung zu produzieren ist ein doppelter Neutroneneinfang mit dem Zwischenschritt ^{31}Si ($T_{1/2} = 2,62\text{ h}$) nötig. Das Verhältnis $^{32}\text{Si}/\text{Si}$ ist nach der Bestrahlungsdauer t gleich

$$\frac{N(^{32}\text{Si})}{N(\text{Si})} = \frac{N(^{30}\text{Si})}{N(\text{Si})} \cdot \frac{\phi^2 \sigma_{30} \sigma_{31}}{\lambda_{31}} \left(t + \frac{1}{\lambda_{31}} (e^{-\lambda_{31}t} - 1) \right). \quad (6.5)$$

Die thermischen (n, γ) -Querschnitte sind nach [54, und dortige Referenzen] $\sigma_{30} = 0,107 \pm 0,002\text{ barn}$ für die Reaktion $^{30}\text{Si}(n, \gamma)^{31}\text{Si}$ und $\sigma_{31} = 0,18 \pm 0,04\text{ barn}$ für die Reaktion $^{31}\text{Si}(n, \gamma)^{32}\text{Si}$. Bei thermischen Neutronenflüssen $\phi = 5 \cdot 10^{14}\text{ cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ (FRM-II) und $\phi = 2 \cdot 10^{15}\text{ cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ (ILL) und einer Bestrahlungsdauer von 10^6 sec (11,6 d) hätte man eine Eichquellenkonzentrationen von

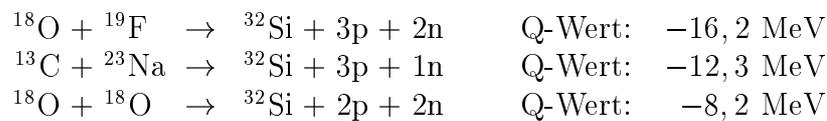
$$\frac{N(^{32}\text{Si})}{N(\text{Si})} = 2,1 \cdot 10^{-12} \text{ (FRM-II)} \quad \text{und} \quad \frac{N(^{32}\text{Si})}{N(\text{Si})} = 3,4 \cdot 10^{-11} \text{ (ILL)} \quad (6.6)$$

Dieses Verfahren hätte den Vorteil, dass man größere Mengen einer Eichprobe herstellen kann. Bei Verwendung von Reinstsilizium oder reinem SiO_2 ist die

Aktivität nach vergleichsweise kurzer Abklingzeit vernachlässigbar. Da der Neutronenfluss quadratisch eingeht ist diese Bestrahlung nur an Hochflussreaktoren (zum Beispiel FRM-II) durchführbar.

6.2.2 Schwerionenbestrahlung

³²Si lässt sich durch eine geeignete Compoundkernreaktion herstellen. Da ³²Si verhältnismässig neutronenreich ist, sollten sowohl Projektil als auch Target neutronenreich sein. Es bieten sich folgende Reaktionen an:



Bei ¹³C und ¹⁸O müssen angereicherte Isotope verwendet werden, da die natürlichen Häufigkeiten mit 1,1% beziehungsweise 0,2% zu niedrig sind. Bei den Reaktionen ¹⁸O+¹⁸O und ¹⁸O+¹⁹F bietet sich ein gasförmiges ¹⁸O-Target an, bei der Reaktion ¹³C+²³Na ein festes ¹³C-Grafittarget.

Die Anregungsfunktionen obiger Reaktionen haben ein ausgeprägtes Maximum. Zur Abschätzung der Lage der jeweiligen Maxima wurden mit CEM-95 die Wirkungsquerschnitte der Reaktion ³⁵P(p, 2p2n)³²Si (Q-Wert -24,2 MeV [38]) bestimmt¹. Die an die errechneten Werte gefittete Gaußkurve hat ein Maximum bei 22,2 MeV (siehe Abbildung 6.2). Das gesuchte Maximum im Schwerpunktsystem ergibt sich aus diesem Wert und dem Unterschied der jeweiligen Q-Werte:

$$E_{\text{max}} = 22,2 \text{ MeV} + 24,2 \text{ MeV} - Q. \quad (6.7)$$

Die errechneten Strahlenergien im Laborsystem sind in Tabelle 6.1 aufgelistet. Die tatsächliche Strahlenergie sollte etwas höher gewählt werden, damit die maximale Energie beim Durchlaufen des Targets erreicht wird.

Da die entsprechenden Wirkungsquerschnitte nicht bekannt sind, ist es notwendig, die bei der Bestrahlung produzierte Menge an ³²Si zu bestimmen. Diese kann während der Bestrahlung durch Messung der bei der Abregung der ³²Si-Kerne emittierten γ -Strahlung [32, 77] gemessen werden.

Es ist auch möglich, absolute BMS-Messungen durchzuführen. Dazu müssen bei Einstellung des Quellenmagneten und der Tandemspannungen auf $A = 30$ (³⁰Si) und nach Reduzierung des Strahlstromes am Eingang des Tandems durch Schlitze auf etwa 100 pA Abschwächerfolien eingefahren werden, sodass ³⁰Si in den

¹CEM-95 lässt als Projektil lediglich Protonen beziehungsweise Neutronen zu.

Reaktion	Projektil	Energie	Projektil	Energie
$^{18}\text{O}+^{19}\text{F}$	^{18}O	60,4 MeV	^{19}F	63,8 MeV
$^{13}\text{C}+^{23}\text{Na}$	^{13}C	53,4 MeV	^{23}Na	94,9 MeV
$^{18}\text{O}+^{18}\text{O}$	^{18}O	76,4 MeV		

Tabelle 6.1: Zur Maximierung des Wirkungsquerschnitts notwendige Strahlenergien

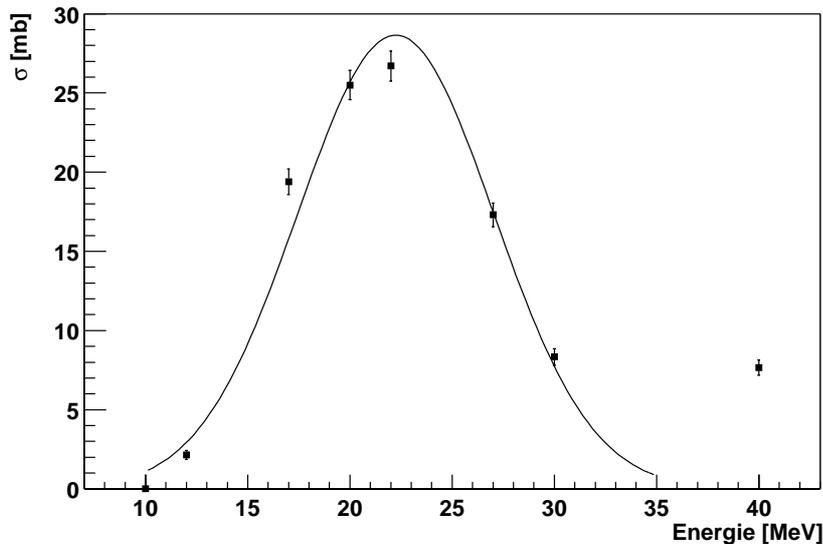
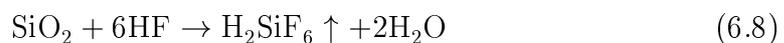


Abbildung 6.2: Mit CEM-95 errechnete Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{35}\text{P}(p, 2p2n)^{32}\text{Si}$.

Detektor eingeschossen werden kann. Die kombinierte Wirkung der Abschwächer muss gemessen werden.

6.3 Probenaufbereitung

Zur Abtrennung des Siliziums von der Messprobe ist die Destillation von Siliziumhexafluorid vorgeschlagen worden [27]. Die Probe wird dazu mit Flusssäure versetzt und durch Erhitzen im Ölbad komplett abgeraucht. Dabei bildet sich das flüchtige Siliziumhexafluorid:



Durch vorsichtiges Einleiten von Stickstoffgas wird dieses aus dem Probenbehälter

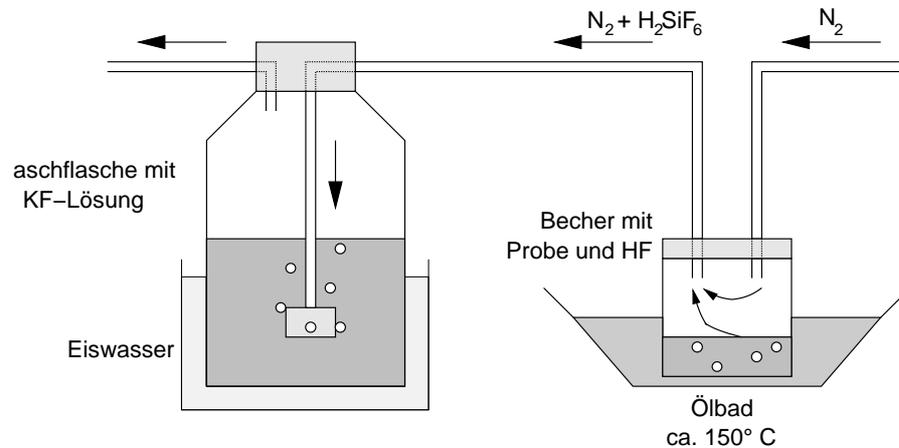
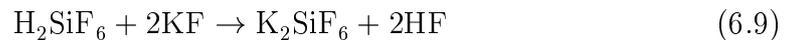


Abbildung 6.3: Destillationsapparatur zur Aufbereitung von Siliziumproben

in eine mit Eiswasser gekühlte Waschflasche mit Kaliumfluoridlösung geblasen (siehe Abbildung 6.3). In dieser wandelt es sich in Kaliumfluosilikat (K_2SiF_6) um:



Das K_2SiF_6 kann mit Ammoniak ausgefällt werden [88]. Dies kann anschließend unmittelbar für die BMS-Messung weiter verarbeitet werden.

Da Fluorwasserstoffsäure nach der gleichen Reaktion wie in Gleichung 6.8 Glas angreift, müssen alle Bauteile, die mit Siliziumverbindungen in Kontakt kommen, aus Teflon gefertigt sein.

6.4 Isobarenunterdrückung bei der BMS-Messung

Im Gegensatz zu ^{26}Al hat ^{32}Si mit ^{32}S ein Isobar, welches negative Ionen bildet.

- ^{32}S ist mit 95% Anteil das häufigste Schwefelisotop
- Schwefel bildet sehr hohe negative Ionenströme
- Schwefel ist sehr präsent. Eine nicht zu unterschätzende Quelle ist das in Tandembeschleunigern als Schutzgas eingesetzte SF_6 .

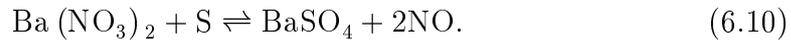
Soll ^{32}Si mit BMS gemessen werden, ist es nötig, den Schwefel effizient vom Silizium zu trennen. Hierzu hat man mehrere Möglichkeiten. Es kann das unterschiedliche chemische Verhalten ausgenutzt werden, aber auch der Unterschied

der Kernladung $\Delta Z = 2$, welcher sich beim Durchgang durch Materie im Energieverlust auswirkt.

6.4.1 Isobarenunterdrückung bei der Probenaufbereitung

Ein erster wichtiger Schritt zur Isobarenunterdrückung ist die chemische Probenaufbereitung. Durch geeignete Wahl der chemischen Aufbereitungsschritte kann das störende Element oft abgetrennt, das störende Isobar um mehrere Größenordnungen unterdrückt werden.

Eine Möglichkeit ist die Fällung von Schwefel. Ähnlich wie bei der Messung von ^{36}Cl wird der Schwefel mittels Bariumnitrat in unlösliches Bariumsulfat überführt [29]:



Dieses kann mit einem Aerosolfilter (Porengröße $0,45 \mu\text{m}$) abfiltriert werden.

Bei anderen BMS-Isotopen kann das störende Isobar (Beispielsweise ^{53}Cr im Fall von ^{53}Mn) auch isotopisch verdünnt [74] werden. Dies ist im Falle ^{32}S aufgrund der hohen Kosten von abgereichertem Schwefel nur in Ausnahmefällen möglich.

6.4.2 Isobarentrennung in der Ionenquelle

Thomsen *et al.* [81] schlugen vor, Silizium nicht atomar, sondern als Trihydrid (SiH_3^-) in den Tandem einzuschleusen. Der Siliziumstrom am Detektor wird hierbei zwar um etwas mehr als eine, der Schwefelstrom jedoch um mehr als acht Größenordnungen erniedrigt. Dies liegt daran, dass das Ion SH_3^- instabil ist und vor dem Erreichen der Stripperfolie im Terminal des Tandems zerfällt.

Erzeugt wird SiH_3^- mittels Verwendung von elementarem Silizium und Einleitung von Wasserstoffgas (Druck $4 \cdot 10^{-5} \text{ Pa}$) in die Ionenquelle.

6.4.3 Isobarentrennung durch unterschiedliches Bremsvermögen

Auch bei Reinstsilizium zur Halbleiterproduktion kann noch ein Schwefelstrom in der Größenordnung von einigen 10 pA nachgewiesen werden [36, 82]. Dieser Reststrom wird auf SF_6 im Restgas zurückgeführt, lässt sich also auch durch höchstreine Probenaufbereitung nicht beseitigen. Daher ist auch eine Abtrennung nach dem Beschleuniger nötig.

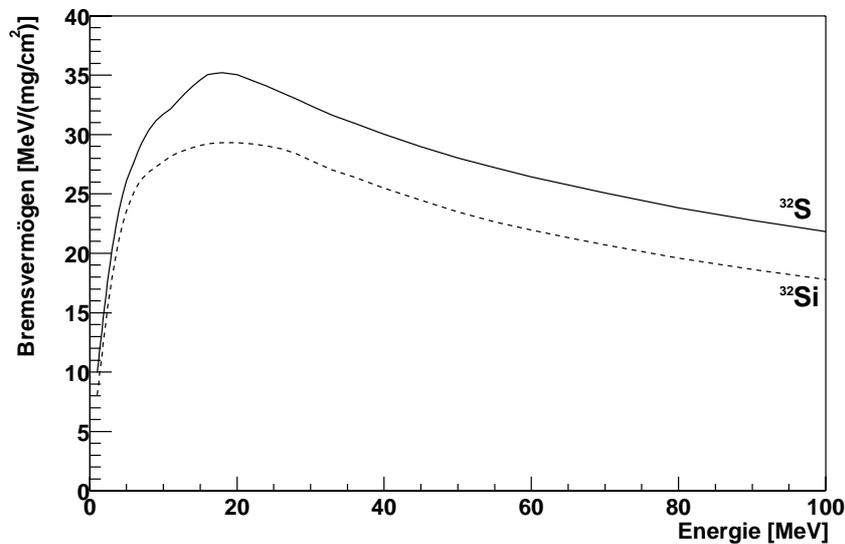


Abbildung 6.4: Das Bremsvermögen von ^{32}S und ^{32}Si in Isobutan. Berechnung mit TRIM-95 [90].

Schwefel und Silizium zeigen auf Grund der unterschiedlichen Kernladung beim Durchgang durch Materie ein unterschiedliches Bremsvermögen (siehe Abbildung 6.4). Beispielsweise wurde in [36] vorgeschlagen, den Strahl durch einen Stapel Aluminiumfolien zu schicken. Aufgrund des stärkeren Energieverlustes (etwa 4 MeV) kann der Schwefel anschließend in einem Spektrografen vom Silizium abgetrennt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden erste Versuche unternommen, den Schwefel in einem Gasabsorber vollständig abzustoppen. Der Absorber sollte zum einen eine ausreichende Dichte haben, um die Ionen auf möglichst kurzer Strecke abzubremesen. Zum anderen sollte der Absorber aus Atomen mit kleiner Kernladung bestehen, damit der Unterschied im Bremsvermögen zwischen Silizium und Schwefel groß wird. Aus diesem Grund wurde als Stoppgas Butan ausgewählt.

Die ^{32}Si -Ionen werden in einer Ionisationskammer nachgewiesen. Daher müssen die transmittierten Ionen noch eine Restenergie oberhalb des Braggpeaks im Detektorgas (etwa 18 MeV in Methan) haben.

Rechnungen mit dem Programm TRIM [90] ergeben eine Strahlenergie von mindestens 130 MeV. Dies bedingt die Auswahl hoher Ladungszustände (9^+ , 11^+) und Terminalspannungen (mindestens 13,0 MV beziehungsweise 10,8 MV). Die Stripausbeute für den 11^+ -Ladungszustand ist unterhalb von 1%. Daher ist mit sehr niedrigen ^{32}Si -Zählraten im Detektor und einer schlechten Nachweisgrenze zu rechnen. Bei einem Siliziumstrom von 10 nA, einer Stripausbeute von 1% und

einer Transmission durch das Strahlführungssystem von 50 % ergibt sich bei einer Probenkonzentration $^{32}\text{Si}/\text{Si} = 10^{-12}$ eine Zählrate von 1 $^{32}\text{Si}/\text{h}$ im Detektor. Die Stripausbeute für den Ladungszustand 9^+ ist etwa 20 mal größer, entsprechend niedriger ist die zu erwartende Nachweisgrenze.

In [82] ist vorgeschlagen worden, die Nachweisgrenze durch eine Erhöhung des Strahlstromes zu verbessern. Dabei soll als Sputtermaterial statt dem sonst üblichen SiO_2 Magnesiumsilicid (MgSi_2) verwendet werden. In ersten Versuchen konnte der Strahlstrom um mehr als drei Größenordnungen erhöht werden.

6.4.4 Isobarentrennung im gasgefülltem Magnet

Durchfliegen Ionen Materie, so stellt sich nach wenigen $\mu\text{g} \cdot \text{cm}^{-2}$ ein mittlerer Ladungszustand \bar{q} ein. Dieser ist sowohl von der Kernladung Z_P als auch von der Geschwindigkeit v_P des Projektils abhängig. In [72] wird eine semiempirische Formel für den Durchflug durch Gastargets angegeben:

$$\bar{q}(v_P, Z_P) = Z_P \cdot \left(1 - 1,08 \cdot \exp \left(-80,1 \cdot Z_P^{-0,506} \left(\frac{v}{c} \right)^{0,996} \right) \right). \quad (6.11)$$

Isobare gleicher Energie haben somit während der Wechselwirkung mit dem Gas unterschiedliche mittlere magnetische Steifigkeiten

$$\overline{\rho \cdot B} = \frac{\sqrt{2Em}}{\bar{q}(Z_P)}. \quad (6.12)$$

Bei konstantem Magnetfeld B bewegen sich die Isobare auf Bahnen mit unterschiedlichem Radius ρ . Dies erlaubt die räumliche Abtrennung von Isobaren in einem gasgefüllten Magneten [33, 55] (siehe Abbildung 6.5). Mit einem gasgefüllten Magneten sind bereits Nachweisgrenzen $^{32}\text{Si}/\text{Si}=1,2 \cdot 10^{-15}$ erreicht worden [49].

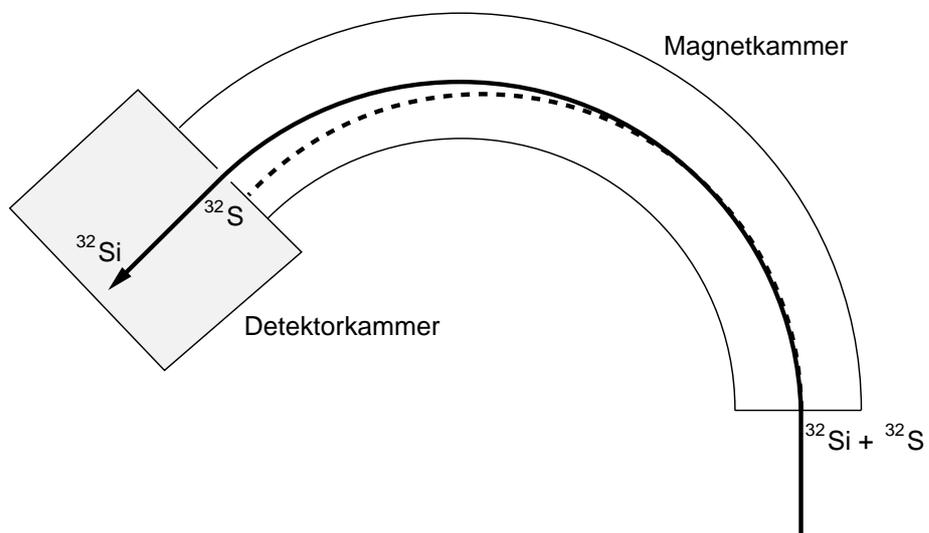


Abbildung 6.5: Die Bahnen der Ionen ^{32}S und ^{32}Si in einem gasgefüllten Magneten. Das Eintrittsfenster am Detektor wird so gewählt dass lediglich ^{32}Si in den Detektor kommt.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Häufigkeitsverteilung der Asteroiden	15
2.2	Asteroidenfamilien	15
2.3	Bezeichnungen der Keplerellipse	16
2.4	Dichteverteilung im kosmischen Staub	19
2.5	Die Protonenflüsse der SCR und der GCR	23
2.6	Wirkungsquerschnitte an den Targetelementen im Staub	24
2.7	^{26}Al -Aktivierung im interplanetaren Staub	27
2.8	Die mit der der LDEF bestimmte Größenverteilung von interplanetarem Staub	27
3.1	Experimenteller Aufbau an der Proton Irradiation Facility	33
3.2	Strahlführungssystem am Garching Tandembeschleuniger	35
3.3	Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{40}\text{Ar}(p,6p9n)^{26}\text{Al}$	38
3.4	Vertikale Einteilung eines Breitengradgürtels	41
3.5	Geomagnetisch breitengradabhängige Produktionsrate von ^{26}Al	42
3.6	Die breitengradabhängigen Depositionsraten von ^{26}Al	42
5.1	Lage der Antarktisstationen	51
5.2	Blick vom Südpol zur Clean-ice area	53
6.1	Berechnete Produktionsquerschnitte für ^{26}Al und ^{32}Si	59
6.2	Wirkungsquerschnitte der Reaktion $^{35}\text{P}(p, 2p2n)^{32}\text{Si}$	61
6.3	Destillationsapparatur zur Aufbereitung von Siliziumproben	62
6.4	Das Bremsvermögen von ^{32}S und ^{32}Si	64

6.5	Der Strahlgang in einem gasgefüllten Magneten	66
-----	---	----

Tabellenverzeichnis

2.1	Chemische Zusammensetzung von C1-Chondriten	20
2.2	Produktionsraten des im interplanetaren Staub produzierten ^{26}Al	23
3.1	Bisherige Daten für ^{26}Al -Depositionsraten	31
3.2	Die gemessenen Produktionsquerschnitte	37
3.3	Verhältnis der proton- zu neutroninduzierten Querschnitte	37
4.1	Die wichtigsten <i>in-situ</i> -Reaktionen	46
4.2	Vergleich der einzelnen Produktionswege für ^{26}Al	48
5.1	Lage der drei Antarktisstationen	51
5.2	Verhältnisse $^{26}\text{Al}/^{27}\text{Al}$ und daraus berechnete Depositionsraten in Polareisproben	56
6.1	Strahlenergien bei maximalen Wirkungsquerschnitt	61

Literaturverzeichnis

- [1] E. Anders. Pre-biotic organic matter from comets and asteroids. *Nature*, 342, 1989.
- [2] J. Beer. EAWAG, Dübendorf. Persönliche Mitteilung.
- [3] A. Blinov und V. Lazarev. Space and temporal variations of the rates of nuclear reactions. *Dokl. Russ. Akad. Nauk*, 63:1630, 1999. In Russisch.
- [4] A. Blinov, S. Massonet, H. Sachsenhauser et al. An excess of ^{36}Cl in modern atmospheric precipitation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:537, 2000.
- [5] D. Brownlee. Cosmic dust: collection and research. *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, 13:147, 1985.
- [6] G. Castagnoli und D. Lal. Solar modulation effects in terrestrial production of ^{14}C . *Radiocarbon*, 22:133, 1980.
- [7] Y. Chen, E. Kashy et al. Half-life of ^{32}Si . *Physical Review C*, 47:1462, 1993.
- [8] D. Clayton. ^{26}Al in the interstellar medium. *Astrophysical Journal*, 280:144, 1983.
- [9] S. Dermott, P. Nicholson, J. Burns und J. Houck. Origin of the solar system dust bands discovered by IRAS. *Nature*, 312:505, 1984.
- [10] R. Diehl, K. Bennet et al. First results from COMPTEL measurement of ^{26}Al 1.8 MeV gamma-ray line from the galactic center region. *Astronomy and Astrophysics Supplement Series*, 97:181, 1993.
- [11] D. Elmore, N. Anataraman et al. Half-life of ^{32}Si from tandem-accelerator mass spectrometry. *Physical Review Letters*, 45(8):589, 1980.
- [12] A. Evans. *The dusty universe*. Wiley, Chichester, 1994.
- [13] L. Fifield, D. Fink et al., Herausgeber. *Proceedings of the Sixth International Conference on Accelerator Mass Spectrometry*, Band 92 der Reihe *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*. North-Holland, 1994.

- [14] R. Finkel und M. Suter. AMS in earth sciences: technique and applications. *Advances in Analytical Geochemistry*, 1:1, 1993.
- [15] P. Freier und W. Webber. Exponential rigidity spectrums for solar-flare cosmic rays. *Journal of Geophysical Research*, 68:1605, 1963.
- [16] H. E. Gove. *From Hiroshima to the Iceman*. Institute of Physics Publishing, Bristol, 1999.
- [17] T. Graedel und P. Crutzen. *Chemie der Atmosphäre*. Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, 1994.
- [18] D. Gregory. The elements of physical and geometrical astronomy. London, 1715.
- [19] K. Grogan, S. Dermott et al. Origin of the ten degree solar system dust bands. *Planetary and Space Science*, 45:1657, 1997.
- [20] K. Gudima, S. Mashnik und V. Toneev. Cascade-excitation model of nuclear reactions. *Nuclear Physics A*, 401:329, 1983.
- [21] W. Hajdas. PIF homepage. <http://pc1582.psi.ch:80/PIF>.
- [22] M. Harwit. *Astrophysical Concepts*. Astronomy and astrophysics library. Springer, New York, 3. Ausgabe, 1998.
- [23] B. Heisinger. *Myonen-induzierte Produktion von Radionukliden*. Dissertation, TU München, 1998.
- [24] B. Heisinger, D. Lal et al. Production of radionuclides in capture of negative muons: part 2; with reference to selected cosmogenic radionuclides. Unveröffentlicht, 2001.
- [25] B. Heisinger und E. Nolte. Cosmogenic in situ production of radionuclides: Exposure ages and erosion rates. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:790, 2000.
- [26] K. Hirayama. Groups of asteroids probably of of common origin. *Astrophysical Journal*, 31:185, 1919.
- [27] H. Hofmann, G. Bonani et al. A new determination of the half-life of ^{32}Si . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 52:544, 1990.
- [28] C. Hohl. Ultrasensitive Analyse der Resorption und Toxikokinetik von Aluminium mit Beschleunigermassenspektrometrie. Diplomarbeit, TU München, 1993.
- [29] D. Huggle. Untersuchung der atmosphärischen Produktion des kosmogenen Radioisotops ^{36}Cl . Diplomarbeit, TU München, 1994.

- [30] D. Huggle, A. Blinov, C. Stan-Sion et al. Production of cosmogenic ^{36}Cl on atmospheric argon. *Planetary and Space Science*, 44:147, 1996.
- [31] T. Jull, J. Beck et al., Herausgeber. *Proceedings of the Seventh International Conference on Accelerator Mass Spectrometry*, Band 123 der Reihe *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*. North-Holland, 1997.
- [32] K. Knie. *Beschleunigermassenspektrometrie mit Isobarenseparation in einem dedizierten gasgefüllten Magneten*. Dissertation, TU München, 1997.
- [33] K. Knie, Th. Faestermann und G. Korschinek. AMS at the munich gas-filled analyzing magnet system GAMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:128, 95.
- [34] S. Kortenkamp und S. Dermott. Accretion of interplanetary dust particles by the earth. *Icarus*, 135:469, 1998.
- [35] W. Kutschera, R. Golser et al., Herausgeber. *Proceedings of the Eighth International Conference on Accelerator Mass Spectrometry*, Band 172 der Reihe *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*. North-Holland, 2000.
- [36] W. Kutschera, W. Henning et al. Measurement of the ^{32}Si half-life via accelerator mass spectrometry. *Physical Review Letters*, 45(8):592, 1980.
- [37] F. Kyte und J. Wasson. Accretion rate of extraterrestrial matter: iridium deposited 33 to 67 million years ago. *Science*, 232:1225, 1986.
- [38] Los Alamos National Laboratory. T2 nuclear information service, 1999. <http://t2.lanl.gov/data/qtool.html>.
- [39] D. Lal und B. Peters. *Cosmic ray produced Radioactivity on the earth*, Band 46/2 der Reihe *Handbuch der Physik*, Seiten 551–612. Springer-Verlag, 1967.
- [40] V. Levchenko. CSIRO atmospheric research. Persönliche Mitteilung.
- [41] C. Lorius, J. Jouzel et al. A 150,000-year climatic record from antarctic ice. *Nature*, 316:591, 1985.
- [42] S. Love und D. Brownlee. Heating and thermal transformation of micrometeoroids entering the earth's atmosphere. *Icarus*, 89:26, 1991.
- [43] S. Love und D. Brownlee. A direct measurement of the terrestrial mass accretion rate of cosmic dust. *Science*, 262:550, 1993.
- [44] R. Lutter, O. Schaile et al. MAR_aB_QU - a MBS and ROOT based online off-line utility. In *Proceedings of the 11. IEEE-Conference, Realtime Computing Applications in Nuclear and Plasma Science*, St. Fe, 1999.

- [45] S. Mashnik, A. Sierk et al. Cascade-exciton model analysis of proton induced reactions from 10 MeV to 5 GeV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 414:68, 1998.
- [46] S. Massonet. *Beschleunigermassenspektrometrie mit stabilen Isotopen und primordialen Radionukliden*. Dissertation, TU München, 1998.
- [47] V. McLane, C. Dunford et al. *Neutron Cross Sections*, Band 2. Academic Press, London, 1988.
- [48] R. Michel, I. Leya und L. Borges. Production of cosmogenic nuclides in meteoroids. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 113:434, 1996.
- [49] U. Morgenstern, L. Fifield und A. Zondervan. New frontiers in glacier ice dating: measurement of natural ^{32}Si by AMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:605, 2000.
- [50] U. Morgenstern, H. Gäggeler et al. ^{32}Si in precipitation. *Earth and Planetary Science Letters*, 144:289, 1996.
- [51] G. Morteani. Lehrstuhl für angewandte Mineralogie und Geochemie, TU München. Persönliche Mitteilung.
- [52] E. Mosley-Thompson, J. Paskievitch, A. Gow und L. Thompson. Late 20th century increase in south pole snow accumulation. *Journal of Geophysical Research*, 104:3877, 1999.
- [53] R. Mueller und S. Saxena. *Chemical Petrology*. Springer, New York, 1977.
- [54] S. Mughabghab, M. Divadeenam und M. Holden. *Neutron Cross Sections*, Band 1. Academic Press, London, 1981.
- [55] D. Müller, B. Bante et al. Accelerator mass spectrometry with a gas-filled spectrograph. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 68:313, 1992.
- [56] R. Muller und G. MacDonald. Glacial cycles and orbital inclination. *Nature*, 377:107, 1995.
- [57] R. Muller und G. MacDonald. Glacial cycles and astronomical forcing. *Science*, 277:215, 1997.
- [58] M. Ochs und S. Ivy-Ochs. The chemical behavior of Be, Al, Fe, Ca and Mg during AMS target preparation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:235, 1997.
- [59] J. Oort. Origin and development of comets. *The Observatory*, 71:129, 1951.

- [60] J. Oort. Empirical data on the origin of comets. In B. Middlehurst und G. Kuiper, Herausgeber, *The moon, meteorites and comets*, Band 4 der Reihe *The solar system*, Kapitel 20. The university of chicago press, 1963.
- [61] G. Raisbeck, F. Yiou et al. Evidence for two intervals of enhanced ^{10}Be deposition in antarctic ice during the last glacial period. *Nature*, 326:273, 1987.
- [62] G. Raisbeck, F. Yiou, J. Klein und R. Middleton. Accelerator mass spectrometry measurement of cosmogenic ^{26}Al in terrestrial and extraterrestrial matter. *Nature*, 301:1, 1983.
- [63] R. Reedy, J. Arnold und D. Lal. Cosmic-ray record in solar-system matter. *Science*, 219:127, 1983.
- [64] J. Reyss, Y. Yokoyama und F. Guichard. Production cross sections of ^{26}Al , ^{22}Na , ^7Be from argon and of ^{10}Be , ^7Be from nitrogen: implications for production rates of ^{26}Al and ^{10}Be in the atmosphere. *Earth and Planetary Science Letters*, 53:203, 1981.
- [65] J. Reyss, Y. Yokoyama und S. Tanaka. Aluminum-26 in deep-sea sediment. *Science*, 193:1119, 1976.
- [66] H. Robertson. Dynamical effects of radiation in the solar system. *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*, 97:423, 1937.
- [67] G. Rudstam. Systematic of spallation yields. *Zeitschrift für Naturforschung*, 21a:1027, 1966.
- [68] G. Rudstam. The evaporation step in spallation reactions. *Nuclear Physics A*, 126:401, 1969.
- [69] G. Rudstam. Calculation of spallation yield distributions including yields of isomeric states. *Physica Scripta*, 20:165, 1978.
- [70] G. Rudstam und E. Hagebø. Calculation of spallation yields: Application to the spallation induced by 600 MeV protons. *Physical Review C*, 23:2129, 1981.
- [71] H. Sachsenhauser. Atmosphärischer Transport von Radionukliden. Diplomarbeit, TU München, 1996.
- [72] R. Sayer. Semi-empirical formulas for heavy-ion stripping data. *Revue de Physique Appliquée*, page 1543, 1977.
- [73] K. Schaifers und G. Traving. *Meyers Handbuch Weltall*. Bibliographisches Institut, Mannheim, 6. Ausgabe, 1984.
- [74] T. J. J. B. C. Schätz. ^{53}Mn in extraterrestrischer Materie. Diplomarbeit, TU München, 1997.

- [75] C. Scheffel, A. Blinov, S. Massonet et al. ^{36}Cl in modern atmospheric precipitation. *Geophysical Research Letters*, 26:1401, 1999.
- [76] T. Schiekkel. *Radiochemische Untersuchung zur Produktion kosmogener Radionuklide: Wirkungsquerschnitte, Produktionsraten, Modelle und Modellrechnungen*. Dissertation, Universität Köln, 1995.
- [77] C. Schmidt. Beschleunigermassenspektrometrie mit ^{60}Fe . Diplomarbeit, TU München, 1996.
- [78] R. Silberberg und C. Tsao. Partial cross-sections in high-energy nuclear reactions, and astrophysical applications. I. Targets with $z \leq 28$. *Astrophysical Journal Supplement Series*, 25:315, 1973.
- [79] R. Silberberg, C. Tsao und J. Letaw. Improved cross section calculations for astrophysical applications. *Astrophysical Journal Supplement Series*, 58:873, 1985.
- [80] J. Stoer und R. Bulirsch. *Numerische Mathematik*, Band 2. Springer, Berlin Heidelberg New York, 3. Ausgabe, 1990.
- [81] M. Thomsen, J. Heinemeier et al. Accelerator mass spectrometry applied to ^{32}Si . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 31:425, 1988.
- [82] D. Treacy, D. Knies et al. Determination of ^{32}Si by AMS at the US naval research laboratory. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:321, 2000.
- [83] C. Tsao, R. Silberberg et al. Cosmic ray effects on microelectronics. Technical Report Part III: Propagation of Cosmic Rays in the Atmosphere, Naval Research Laboratory, Washington, D.C., August 1984.
- [84] International Astronomical Union. Minor planet center, homepage, Januar 2001. <http://cfa-www.harvard.edu/cfa/ps/mpc.html>.
- [85] Johns Hopkins University. NEAR-shoemaker homepage, Februar 2001. <http://near.jhuapl.edu>.
- [86] UNSCEAR. Ionizing radiation: sources and biological effects. Report to the general assembly, 1982.
- [87] L. Wang, T. Ku, J. Southon und M. Kusakabe. ^{26}Al - ^{10}Be systematics in deep-sea sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60:109, 1996.
- [88] R. Weast, Herausgeber. *Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press, Cleveland, Ohio, 56th Ausgabe, 1975.
- [89] L. Zerle. *Der ^{41}Ca -Bombenpuls in alpinem Gletschereis*. Dissertation, TU München, 1995.

-
- [90] J. F. Ziegler, J. P. Biersack und U. Littmark. *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon, Oxford, 1985.
- [91] U. Zoppi, H. Matsizaki et al. New interpretation of the ^{10}Be and ^{26}Al content in cosmic spherules. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:319, 1997.

Vielen Dank ...

an alle, die ich bei der Durchführung dieser Arbeit unterstützt haben, ohne sie wäre sie nicht durchführbar gewesen:

Meinem Doktorvater Prof. Dr. Eckehart Nolte möchte für das interessante und vielseitige Thema danken, für die ständige Diskussionsbereitschaft und für die Unterstützung bei der Durchführung der Experimente.

Dr. Spiering und Dipl.-Phys. Matthias Leuthold von der AMANDA-Gruppe des DESY, Prof. Dr. Dimiter Balabanski von der St. Kliment Ohridsky Universität in Sofia und Vladimir Levchenko von der CSIRO in Melbourne für die Beschaffung der Eisproben.

Dr. Wojtek Hajdas für die Unterstützung bei der Protonenbestrahlung am PSI.

Prof. Dr. Alexander Blinov und MS. Vitalij Lazarev für die Berechnungen der atmosphärischen Produktion.

Allen anderen Mitgliedern der AMS-Gruppe für Hilfe bei den Strahlzeiten, die vielen nützlichen Tipps und fröhliche Atmosphäre: Dr. Bernhard Heisinger, Dr. Klaus Knie, Dr. Gunther Korschinek, Dr. Stefan Massonet, Dr. Catalin Stan-Sion, Dr. Christian Steinhausen, Dipl.-Phys. Elisabeth Beck, Dipl.-Phys. Thomas Huber, Dipl.-Ing. Herbert Reithmeier, Ursel Heim und Norbert Gärtner.

Dr. Juerg Beer für die Möglichkeit, die Südpolprobe in seinen Labors an der EAWAG aufbereiten zu können.

Dem Beschleunigerteam, insbesondere den Operateuren unter der Leitung von Herrn Walter Carli. Ohne sie wäre in Garching keine BMS möglich.

Den Werkstätten der TU, von E15 und des Beschleunigerlabors für ihre stetige Hilfsbereitschaft bei kleinen und größeren Problemen.

Dr. Gernot Göger, Dr. Martin Koch und Dipl.-Phys. Christian Winklhofer.

Zuletzt möchte ich noch meinen Eltern danken. Ihre Unterstützung machte mir diese Ausbildung erst möglich.

