

KFK-306

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

Februar 1965

KFK 306

*Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.
Zentralbücherei*

Institut für Radiochemie

10. Mai 1965

Reichweiteverteilung isobarer Reihen und Reichweite
von Fragmenten bei der thermischen Spaltung von Pu-239

Martin Hollstein



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

Februar 1965

K F K 306

Institut für Radiochemie

Reichweiteverteilung isobarer Reihen
und Reichweite von Fragmenten bei
der thermischen Spaltung von Pu-239

von

Martin Hollstein

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

INHALT

1. EINFÜHRUNG	1
2. REICHWEITEVERTEILUNG ISOBARER REIHEN	2
2.1. Bisher durchgeführte Untersuchungen	2
2.1.1. Versuchsanordnungen	2
2.1.2. Ergebnisse	7
2.2. Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit	8
2.2.1. Stripping-Methode	8
2.2.2. Reichweiteverteilung der isobaren Reihen 140 und 127 . . .	11
a) Versuchsanordnung	12
b) Auswertung	12
c) Ergebnisse	19
2.2.3. Diskussion der Ergebnisse	21
a) Stripping-Methode	21
b) Reichweiten	21
c) Reichweiteverteilung	22
d) Niederenergetischer Untergrund	22
2.3. Vergleich und Zusammenfassung	27
2.3.1. Korrekturen	27
2.3.2. Vergleich der Ergebnisse	30
2.3.3. Schlußfolgerungen	35
3. REICHWEITE VON FRAGMENTEN	36
3.1. Bisher vorliegende Ergebnisse	36
3.2. Bestimmung der Reichweite von Fragmenten	36
3.2.1. Fragmentreichweite des Ba-139	40
3.2.2. Fragmentreichweite des Cs-137	42
3.3. Diskussion der Ergebnisse	44
3.3.1. Abhängigkeit der Fragmentreichweiten von $Z - Z_p$	46
3.3.2. Einfluß der Fragmentreichweiten auf die Reichweiteverteilung isobarer Reihen	47
4. ZUSAMMENFASSUNG	52
5. EXPERIMENTELLER TEIL	54
5.1. Stripping-Methode	54
5.2. Reichweiteverteilung der isobaren Reihen 140 und 127	55

5.2.1. Experiment 1	55
5.2.2. Experimente 2 und 3	58
5.3. Reichweiten innerhalb der isobaren Reihe 139	61
5.3.1. Kumulative Reichweite des Ba-139	63
5.3.2. Fragmentreichweite des Ba-139	63
5.3.3. Fragmentreichweite des Cs-139	64
5.4. Radiochemische Trennungsgänge	66
5.5. Meßtechnik und Analyse der Abfallkurve	67
6. ANHANG	69
6.1. Mathematische Ableitungen	69
6.1.1. Stripping-Verschleppung	69
6.1.2. Reichweiteformel	69
6.2. Korrekturen bei der Berechnung der Fragmentreichweiten	72
6.2.1. Ba-139	72
6.2.2. Cs-139	75
7. LITERATUR	77

1. EINFÜHRUNG

Bei der thermischen Spaltung wird aus dem Targetkern durch Einfang eines thermischen Neutrons ein hoch angeregter Zwischenkern gebildet, der sich in zwei Bruchstücke, sogenannte Primärfragmente aufspaltet. Diese fliegen mit großer kinetischer Energie auseinander und besitzen eine hohe Anregungsenergie. Durch die Verdampfung von Neutronen entstehen daraus innerhalb eines Zeitraumes von ungefähr 10^{-15} sec primäre Spaltprodukte. Sie wandeln sich durch eine Reihe von β^- -Zerfällen schrittweise in sekundäre Spaltprodukte um⁺⁾ .

Der Mechanismus der Kernspaltung ist noch nicht völlig aufgeklärt. Es wurden Modelle entwickelt, die jeweils einige experimentelle Befunde deuten, nicht aber den Ablauf der Spaltung als ganzes beschreiben können. Eine Verfeinerung der Theorie ist möglich, wenn die Anzahl experimenteller Details vergrößert wird. Informationen über den Spaltprozeß liefern Untersuchungen über die Massen-, Energie-, Ladungs- und Winkelverteilung der Fragmente, sowie über die Häufigkeit, Energie- und Winkelverteilung der verdampften Neutronen.

Bestimmungen der Dispersion der kinetischen Energie von Spaltfragmenten geben Aufschluß über Eigenschaften des Zwischenkerns, zum Beispiel über dessen Deformation im Moment der Spaltung. Sie können auf kernphysikalischem oder kernchemischem Wege erfolgen.

Die kernphysikalischen Untersuchungen der Energiedispersion werden mit Hilfe von Ionisationskammern, Halbleiterdetektoren oder Flugzeitanordnungen durchgeführt. Dabei sind nur Fragmentpaare zu erfassen.

Kernchemische Methoden ermöglichen die Untersuchung der Energiedispersion einzelner Fragmente, und zwar über eine Ermittlung der Reichweiteverteilung in Absorbern. Ihr Nachteil besteht darin, daß sich in vielen Fällen die Fragmente durch β^- -Zerfall in Spaltprodukte umwandeln, bevor ihre Isolierung stattfinden kann. Er wird jedoch weitgehend durch eine große Selektivität aufgehoben. Aus der Vielzahl der Spaltprodukte verschiedener Nukleonen- und Kernladungszahlen können einzelne Elemente mittels radiochemischer Verfahren abgetrennt werden. Dadurch ist eine Identifizierung der Spaltprodukte hinsichtlich ihrer Kernladungszahlen möglich. Die Zuordnung zu einer bestimmten Nukleonenzahl erfolgt gewöhnlich durch einen Vergleich charakteristischer Zerfallseigenschaften des betreffenden Nuklids mit bekannten Kerndaten.

+) Im folgenden werden primäre Spaltprodukte als Fragmente, sekundäre Spaltprodukte kurz als Spaltprodukte bezeichnet.

2. REICHWEITEVERTEILUNG ISOBARER REIHEN

2.1. Bisher durchgeführte Untersuchungen

2.1.1. Versuchsanordnungen

Die kernchemische Untersuchung der Reichweiteverteilung von Spaltprodukten beruht darauf, daß die von einem dünnen Target emittierten Fragmente in geeigneten Absorbern, sogenannten Fängern, aufgefangen werden⁺⁾. Wird die Häufigkeit eines Spaltproduktes in dem hinter verschiedenen Absorberdicken liegenden Teil des Fängers bestimmt, so erhält man eine integrale Reichweiteverteilungskurve.

Die bisher benutzten Versuchsanordnungen lassen sich in vier Gruppen einteilen (siehe Abbildung 1):

- a) Kollimierte Spaltprodukte werden in einem festen Absorber aufgefangen. Dieser wird in eine Reihe dünner Fängerschichten A_i unterteilt. Die Kollimierung erfolgt nur im Raum zwischen Target und Fänger.
- b) Kollimierte Spaltprodukte werden in einem gasförmigen Absorber bei konstantem Druck aufgefangen. Der Fänger ist in eine Anzahl dünner Schichten A_i unterteilt. Die Kollimierung findet innerhalb des Fängers statt.
- c) Nicht kollimierte Spaltprodukte werden nach Durchlaufen eines festen Absorbers A in einem festen Absorber B aufgefangen. Die Dicke D beider Absorber ist variabel.
- d) In einer Serie von Bestrahlungen werden kollimierte Spaltprodukte nach Durchlaufen eines gasförmigen Absorbers A in einem festen Absorber B aufgefangen. Der Gasdruck P ist variabel.

Mit den beiden ersten Anordnungen erhält man differentielle, mit den beiden letzten integrale Reichweiteverteilungskurven.

+) Die im Zusammenhang mit derartigen Rückstoßexperimenten verwendeten Ausdrücke "dünn" oder "dick" besagen, daß die Dicke des Targets beziehungsweise Fängers klein oder groß ist gegenüber der Reichweite der Rückstoßkerne in dem betreffenden Material.

Entsprechend dieser Klassifizierung wurden die verschiedenen experimentellen Anordnungen von folgenden Autoren verwendet:

- a) Brown und Oliver (01), sowie Aras et al. (02). Der Fänger bestand aus einem Aluminium-Blech, von dem nach der Bestrahlung mit Hilfe der Stripping-Methode (näheres siehe Abschnitt 2.2.1.) parallel zur Oberfläche sehr dünne Fängerschichten (A_1) abgelöst und radiochemisch analysiert wurden.
- b) Katcoff et al. (03), Marsh und Miskel (04), sowie Petrzhak et al. (05). Die Spaltprodukte wurden auf sehr dünnen Kunststoff-Folien (ungefähr $6 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) gesammelt. Diese waren in definierten Abständen im Kollimator angebracht und dienten zur Unterteilung des Absorbers in dünne Fängerschichten (A_1). Die relative Spaltprodukthäufigkeit in den einzelnen Folien wurde radiochemisch ermittelt.
- c) Douthett und Templeton (06). Ein dünnes Target wurde in direktem Kontakt mit einigen aufeinanderliegenden dünnen Fängerfolien bestrahlt. Die Autoren bestimmten die relative Häufigkeit der Spaltprodukte in den Fängerfolien radiochemisch. Durch schrittweise Aufteilung des Fängers in zwei Absorbergruppen A und B mit den variablen Gesamtstärken D_A und D_B ergaben sich integrale Verteilungskurven.
- d) Good und Wollan (07). Nur diejenigen Spaltprodukte, deren Reichweite größer ist als das dem Gasdruck P_A entsprechende Flächengewicht des Absorbers A wurden auf dem festen Fänger B gesammelt. Die Bestimmung ihrer relativen Häufigkeit erfolgte durch eine Aktivitätsbestimmung der verzögerten Neutronenstrahler der 55 sec - und 22 sec - Perioden. Die Auftragung der aus verschiedenen Bestrahlungen erhaltenen Sättigungsaktivitäten gegen den jeweiligen Gasdruck ergab eine komplexe integrale Reichweiteverteilungskurve. Sie setzt sich zusammen aus den einzelnen Verteilungskurven der 55 sec - und 22 sec - Perioden. Diese wurden hauptsächlich dem Br-87 und J-137 zugeordnet.

In der Abbildung 1 ist der Anschaulichkeit halber nur eine Verteilungskurve wiedergegeben.

Tabelle 1

Autor	Typ	Target und Reaktion	K	A	Nuklid	S _{exp}	S _{korr}	D _F
Brown u. Oliver (01)	a	0,1 mg/cm ² U-235, n _{th}	1:3	Al	Ba-140 ^x	17,5 ± 0,5 ⁺	(16,1)	-
Aras et al. (02)	a	0,1 mg/cm ² U-235, n _{th}	?	Al	Mo-99 ^x Ba-140	13,7 ⁻ 17,9 ⁻	(12,3) (16,6)	-
Douthett u. Templeton (06)	c	0,9 mg/cm ² U-238, P ₃₃₅	-	Al	Sr-91 ^x Ba-140	23,0 ± 2 24,3 ± 2	(12) (10)	-
Katooff et al. (03)	b	0,1 mg/cm ² Pu-239, n _{th}	1:7	Luft	Sr-91 ^x Ba-140	11,4 ± 0,7 ⁻ 12,6 ± 1,3 ⁻	(10,0) (11,2)	-
Marsh u. Miskel (04)	b	1 µg/cm ² Cf-252, sp.	1:10	Luft	Cd-115 ^x	11 ⁻	(11)	-
Petrzhak et al. (05)	b	0,1 mg/cm ² U-233, n _{th}	1:7	Luft ^x	Sr-91 ^x Ba-140	(9,5 ± 1) ⁺ (11,3 ± 1) ⁺	8,0 ± 0,8 9,9 ± 1,0	12,3 11,2
Good u. Wollan (07)	d	0,3 mg/cm ² U-235, n _{th}	1:3	Luft ^x	Br-87 J-137	(15,5) (21,9)	10,5 15,7	8 5
Cohen et al. (08)	m	U-235, n _{th}	-	-	Zr-87	-	-	11,4 ± 0,8
Stein (09)	f	U-235, n _{th}	-	-	(A = 97)	-	-	8,1 ± 1,6
Milton u. Frazer (10)	f	U-235, n _{th}	-	-	(A = 97)	-	-	12,2

Erläuterungen:

Spalte 1: Autoren und Literaturstelle

Spalte 2: Typ der experimentellen Anordnung

a - d: vergleichende Abbildung 1

m: Magnetspektrometer

f: Flugzeit-Methode

Spalte 3: Targetdicke und Art der Spaltung

n_{th} : thermische Neutronen

sp: Spontanspaltung

P_{335} : 335-MeV-Protonen

Spalte 4: Kollimatorgeometrie,

Durchmesser : Länge

Spalte 5: verwendete Absorber

x) außer den angegebenen wurden andere benutzt

Spalte 6: als Spaltprodukte untersuchte Nuklide
x) außer den angegebenen wurden andere untersucht

Spalte 7: experimentelle Reichweitendispersion in %
+) und -): Form der Verteilungskurve
(siehe Text)

Spalte 8: für Targetdicke und Kollimatorgeometrie
korrigierte Reichweitendispersion in %

Spalte 9: Dispersion der kinetischen Energie der
Primärfragmente in %

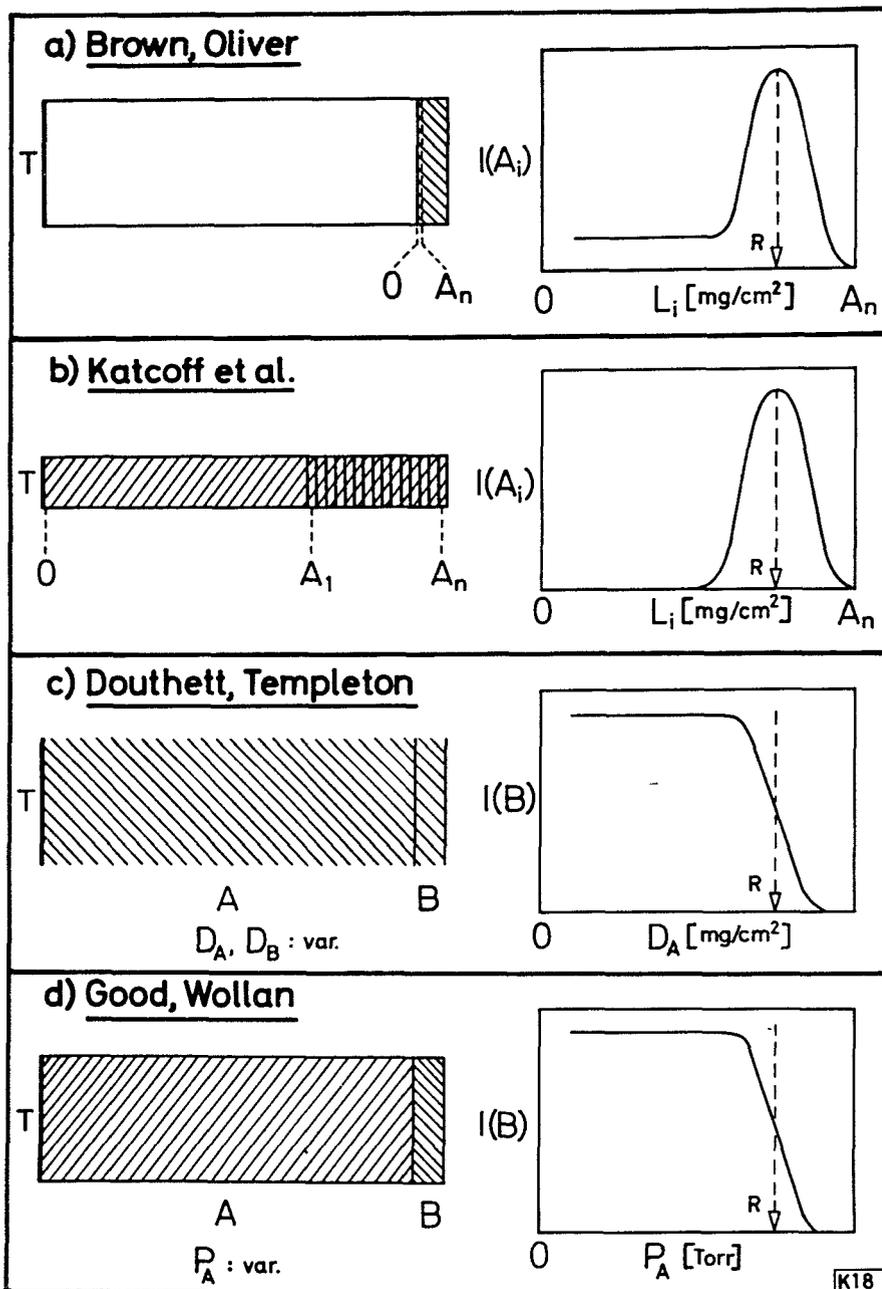


Abb. 1 Schematische Darstellung einiger Methoden zur Bestimmung der Reichweiteverteilung von Spaltprodukten

T: Target

O: Beginn des Absorbers

A_i : i-te Fängerschicht des Absorbers

L_i : Eindringtiefe bis zur Fängerschicht A_i

A,B: Absorber

D,P: deren Dicke bzw. Gasdruck

$I(x)$: relative Häufigkeit der Spaltprodukte in (x); $x = A_i$ oder B

Gasförmige und feste Absorber sind durch unterschiedliche Schraffur gekennzeichnet.

2.1.2. Ergebnisse

Bisher vorliegende Daten über die Reichweitedispersion von Spaltprodukten sind in der Tabelle 1 zusammengestellt^{x)}. Die in Spalte 7 aufgeführten Werte von S_{exp} sind die relativen experimentellen Reichweitedispersionen (in %). S_{exp} wird definiert als relative Dispersion der mittleren Reichweite R:

$$S_{\text{exp}} = \frac{H_{\text{R}}(\text{exp})}{R}$$

Dabei ist $H_{\text{R}}(\text{exp})$ die Halbwertsbreite der experimentellen Reichweiteverteilung. Die Form der Reichweiteverteilungskurven einiger Autoren kann in guter Näherung durch eine Gauß-Verteilung beschrieben werden. Die Verteilungskurven anderer Autoren hingegen weichen von einer Normalverteilung ab. Diese unterschiedlichen Kurvenformen sind durch +) und -) gekennzeichnet.

Die in Spalte 8 enthaltenen Werte von S_{korr} sind die für Targetdicke und Kollimatorgeometrie korrigierten relativen Reichweitedispersionen (in %):

$$S_{\text{korr}} = \frac{H_{\text{R}}(\text{korr})}{R}$$

Um einen besseren Vergleich der von verschiedenen Autoren jeweils nur für S_{exp} oder S_{korr} angegebenen Werte untereinander zu ermöglichen, wurden die entsprechenden Werte umgerechnet. Dies geschah mit den im Abschnitt 2.3.1. angegebenen Korrekturgrößen. Die Ergebnisse dieser Umrechnung sind in den Spalten 7 und 8 in Klammern angegeben.

Spalte 9 enthält Werte für die vom Spaltprozess herrührende relative Dispersion D_{F} der kinetischen Energie E der Primärfragmente (in %):

$$D_{\text{F}} = \frac{H_{\text{E}}(\text{F})}{E}$$

Sie werden für einen im Abschnitt 2.3. durchgeführten Vergleich benötigt.

x) Bei dieser Aufstellung wurden die mit dicken Targets durchgeführten Experimente wegen der größeren Unsicherheit der Ergebnisse nicht berücksichtigt.

2.2. Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit

Katcoff et al. (03) bestimmten die Reichweitedispersion von insgesamt 20 Spaltprodukten im Bereich der Nukleonenzahlen 83 bis 157. Trägt man diese Werte gegen die entsprechenden Nukleonenzahlen auf, so erhält man einen Kurvenverlauf, der einander widersprechende Deutungen zuläßt (vergleiche auch Abbildung 9):

- 1) Die Reichweitedispersion ist innerhalb der Fehlergrenzen von der Nukleonenzahl unabhängig (Feststellung der Autoren).
- 2) Die Reichweitedispersion wird mit zunehmender Bildungswahrscheinlichkeit der Spaltprodukte kleiner.

Um eine Entscheidung für eine dieser beiden Deutungen treffen zu können, wurde versucht, die differentielle Reichweiteverteilung von Spaltprodukten unterschiedlicher Bildungswahrscheinlichkeiten in Aluminium zu bestimmen. Als Versuchsanordnung diente der Typ a, als Spaltprodukte wurden die Nuklide Ba-140, Sb-127 und Ag-111 gewählt.

2.2.1. Stripping-Methode

Eine Untersuchung der differentiellen Reichweiteverteilung in festen Absorbern setzt voraus, daß der Fänger in eine Reihe aufeinanderfolgender dünner, homogener Folien bekannter Stärke aufgeteilt werden kann. Diese Forderung ist äußerst schwierig auf direktem Wege zu erfüllen. Zum Beispiel müßte die Folienstärke bei einem Aluminium-Fänger zwischen 0,05 und 0,1 mg/cm², also zwischen 0,2 und 0,4 µ liegen, um eine hinreichend gute Auflösung zu erhalten. Das Problem läßt sich jedoch auf indirektem Wege lösen. Man setzt zur Bestrahlung nicht ein Folienpaket ein, sondern einen dicken Fänger, der erst nach der Bestrahlung in einzelne "Folien" zerlegt wird. Das ermöglicht ein elektrochemisches Verfahren, die sogenannte Stripping-Methode.

Bei der anodischen Oxydation von Aluminium wird auf der Oberfläche ein homogener Film von Aluminiumoxyd gebildet, dessen Stärke im Bereich von 20 bis 200 Volt der angelegten Spannung direkt proportional ist; siehe Walkenhorst (11), Hass (12), Harris (13), sowie Davies et al. (14). Diese Autoren erhielten bei der anodischen Oxydation von Aluminium in verdünnter Zitrat- oder Tartratlösung Filmdicken, die einem Flächengewicht von 0,024 bis 0,026 mg Al/cm² entsprechen (bei einer Spannung von 100 Volt).

Eine derart erzeugte Schicht von Aluminiumoxyd läßt sich nach Lewis und Plumb (15) quantitativ mit einer heißen wässrigen Lösung von Phosphorsäure und Chromtrioxyd (im folgenden als Stripping-Lösung bezeichnet) ablösen, ohne daß das darunterliegende Aluminium angegriffen wird.

Die von Davies et al. (14) erstmalig für Reichweiteuntersuchungen eingesetzte Stripping-Methode besteht demnach aus einem zweistufigen Prozess, bei dem nacheinander dünne, homogene Aluminiumoxydschichten bekannter Stärke erzeugt und selektiv abgelöst werden. Wie die folgenden Untersuchungen zeigen, liegt ein wesentlicher Nachteil dieser Technik darin, daß sie nicht auf alle Elemente angewendet werden kann.

Um ihre Anwendbarkeit zu testen, wurde mit einem Aluminium-Blech, in dem Spaltprodukte homogen verteilt waren, der Stripping-Prozess durchgeführt. Dabei wurde zunächst ein dünnes Blech einer 0,1 %igen Legierung von Uran in Aluminium mit thermischen Neutronen bestrahlt. Dieses war, um Verluste von Rückstoßkernen zu verhindern, allseitig mit dünnen Blechen des gleichen Materials abgedeckt. Anschließend wurde die relative Aktivität von Ba-140, Sb-127 und Ag-111 in den 10 ersten Stripping-Fractionen und im Rest des Target-Blechs ermittelt.

Definiert man

\bar{F} als mittleres Flächengewicht einer Stripping-Schicht,

A_i^{\dagger} als die in der Fraktion i gefundene Aktivität (auf \bar{F} normiert),

A_i als die in der entsprechenden Fängerschicht tatsächlich vorhandene Aktivität (auf \bar{F} normiert),

so sollte wegen der gleichmäßigen Verteilung der Spaltprodukte im Target für jede Stripping-Fraktion gelten: $A_i^{\dagger} / A_i = 1$. A_i ergibt sich aus der auf \bar{F} normierten relativen Spaltproduktaktivität im Rest des Target-Blechs.

Das Ergebnis dieser Untersuchung zeigt die Abbildung 2. Für jede einzelne, auf \bar{F} normierte Stripping-Fraktion i ist der Quotient A_i^{\dagger} / A_i aufgetragen. Im Fall des Ba-140 wird für alle Fraktionen der Sollwert innerhalb der Fehlergrenzen erreicht. Beim Sb-127 und Ag-111 hingegen liegt der Wert für A_i^{\dagger} / A_i unter dem Sollwert und nähert sich diesem mit ansteigender Fraktionszahl.

Die Ergebnisse deuten darauf hin, daß die Anwendbarkeit der Stripping-Methode begrenzt wird durch das Redox-Potential e_0 des zu isolierenden Elements, vergleiche Tabelle 2.

Tabelle 2

Element	Ba	Al	Sb	Ag
e_0 (Volt)	-2,9	-1,7	+0,2	+0,9

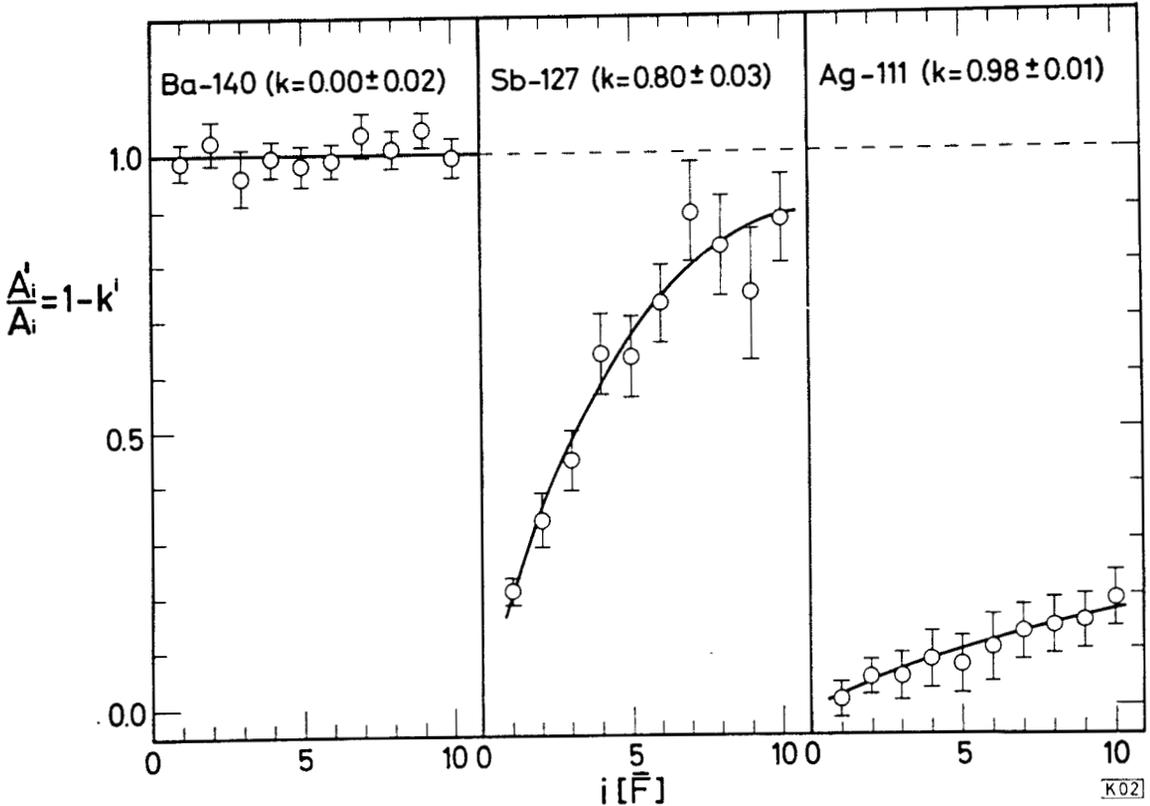


Abb. 2 Verschleppung der Aktivitäten beim Stripping von Ba, Sb und Ag

- o : experimentelle Punkte mit Fehlergrenzen
- : berechneter Verlauf nach Formel 2 a
- $l \bar{F} = 0,075 \text{ mg Al/cm}^2$

Bei der Isolierung von Elementen, die wesentlich edler sind als Aluminium, findet eine Verschleppung der Aktivitäten statt. Unter der Annahme, daß ein jeweils konstanter Bruchteil k ("Verschleppungsfaktor") der in der Schicht i vorhandenen Aktivität A_i in die nächste Schicht verschleppt wird, kann dieser Vorgang durch die Funktion

$$A_n^f = (1 - k) \sum_{i=1}^{i=n} A_i \cdot k^{n-i} \quad (1)$$

beschrieben werden. Dabei ist A_n^f die in der n -ten Fraktion gefundene Aktivität. Daraus folgt für jede einzelne Fraktion i :

$$A_i = \frac{A_i^f - k \cdot A_{i-1}^f}{1 - k} \quad (1a)$$

Bei einer gleichmäßigen Aktivitätsverteilung ($A_i = \text{const.}$) gilt für jede einzelne Fraktion i:

$$A_i = \frac{A_i^*}{1 - k^i} \quad (2a)$$

Die in Abbildung 2 ausgezogen gezeichneten Kurven stellen den Verlauf dieser Funktion dar. Die Werte von k betragen für

$$\text{Ba: } 0,00 \pm 0,02$$

$$\text{Sb: } 0,80 \pm 0,03$$

$$\text{Ag: } 0,98 \pm 0,01$$

Der Wert von k ist unabhängig von der in der Stripping-Lösung vorhandenen Trägermenge. Untersucht wurde der Bereich von 0,3 µg/ml bis 0,4 mg/ml.

Nach diesen Ergebnissen ist die Stripping-Methode mit Aluminium nur auf solche Elemente ohne Korrekturen anwendbar, deren Redox-Potential nicht wesentlich positiver ist als das des Aluminiums. Wegen einer günstigeren Lage in der Spannungsreihe kann die Verwendung anderer Elemente den Anwendungsbereich erweitern. So läßt sich die Stripping-Technik nach Davies et al. mit Silizium (16), nach McCargo et al. mit Wolfram (17), sowie nach Whitton und Davies mit Gold (18) durchführen. Die Verwendung der beiden zuletzt genannten Elemente als Fängermaterial führt jedoch zu einer erhöhten Streuung der Spaltprodukte. Bei differentiellen Reichweiteuntersuchungen mit Aluminium-Fängern können nach Gleichung 1a Korrekturen für die Stripping-Verschleppung angebracht werden.

2.2.2. Reichweiteverteilung der isobaren Reihen 140 und 127

Zur Untersuchung der differentiellen Reichweiteverteilung isobarer Reihen wurden drei Experimente unter Anwendung der Stripping-Technik durchgeführt. Der bei einigen Spaltprodukten nach 2.2.1. auftretende Stripping-Verlust muß durch Korrekturen berücksichtigt werden. Das führt zu einer größeren Unsicherheit der experimentellen Ergebnisse. Daher wurde in den Experimenten 2 und 3 lediglich die Reichweiteverteilung des Ba-140 untersucht. Beim Experiment 1 erfolgte eine Analyse auf Ba-140, Sb-127 und Ag-111.

a) Versuchsanordnung

Die wichtigsten Daten der Experimente sind in der Tabelle 3 zusammengestellt. Um eine Kontamination des Kollimatorinnern und des Fängers mit Targetmaterial zu verhindern, wurden die Targets mit dünnen Aluminiumschichten, im Experiment 3 zusätzlich mit einer $0,1 \text{ mg/cm}^2$ starken Aluminiumoxydfolie abgedeckt. Der Kollimator bestand im Experiment 1 aus einer mehrfach durchbohrten Aluminiumplatte. Er wird als Lochkollimator bezeichnet. In den Experimenten 2 und 3 wurde ein Kollimator verwendet, in dem mehrere Blendenringe angebracht waren. Sie sollten verhindern, daß an der Kollimatorwand gestreute Spaltprodukte in den Fänger gelangten. Er wird als "streuarmer" Kollimator bezeichnet. Die Kollimatorgeometrie, definiert als Verhältnis von Durchmesser zu Länge, war für beide Kollimatoren gleich.

Um eine Abbremsung und Streuung der Spaltprodukte in der zwischen Target und Fänger befindlichen Luft einzuschränken, wurden die Versuchsanordnungen vor der Bestrahlung evakuiert. Nach der Bestrahlung erfolgte eine Messung des Gasdruckes.

Vor dem eigentlichen Hauptfänger waren beim Experiment 1 zwei, beim Experiment 2 ein dünner Vorfänger angebracht.

b) Auswertung

Zur Auswertung wurden alle in den Stripping-Fractionen und Vorfängern ermittelten relativen Spaltproduktaktivitäten auf das mittlere Flächengewicht \bar{F} einer Stripping-Fraktion normiert. Diese Werte werden mit A_{rel} bezeichnet. \bar{F} ergab sich aus der Gesamtoberfläche O_H des Hauptfängers und aus dem Mittelwert \bar{G} aller für jede Fraktion bestimmten Gewichtsverluste des Hauptfängers. Die absolute Eindringtiefe D_i der in einer Fraktion i gefundenen Spaltprodukte ist die Summe folgender Flächengewichte (vergleiche Tabelle 3):

$$D_i = \bar{F}(1 - 0,5) + D_V + D_{Al} \quad (\text{mg Al/cm}^2)$$

mit D_V : Dicke des 1. und 2. Vorfängers in mg Al/cm^2

mit D_{Al} : Flächengewicht zwischen halber Targetdicke und Fänger
in mg Al/cm^2

Tabelle 3

Experiment	D_T	D_A	Kollimator		P	D_{Al}	D_V		\bar{G}	O_H	\bar{F}	t	$\phi_{n,th}$
			K	L			1.	2.					
1	0,05	0,02 Al	1:5	5	(niedrig)	0,03	0,80	0,76	0,576	8,14	0,0707	7	$1,3 \cdot 10^{13}$
2	0,08	0,04 Al	1:5	30	3	0,07	0,98	-	0,281	4,09	0,0688	28	$3 \cdot 10^{13}$
3	0,15	0,02 Al 0,10 Al ₂ O ₃	1:5	30	16	0,25	-	-	0,356	4,56	0,0780	7	$2,3 \cdot 10^{13}$

D_T : Dicke des Pu-239-Targets in mg/cm^2

D_A : Dicke der Target-Abdeckung in mg/cm^2

K : Kollimatorgeometrie ; Durchmesser : Länge

L : Kollimatorlänge in mm

P : Luftdruck im Kollimator nach der Bestrahlung, in Torr

D_{Al} : Flächengewicht zwischen 1/2 Targetdicke und Fänger, in $mg Al/cm^2$

$$D_{Al} = 0,5 D_T + D_A + \frac{P}{760} \cdot 0,1 L \cdot 1,2$$

D_V : Dicke des 1. und 2. Vorfängers in $mg Al/cm^2$

\bar{G} : mittlerer Gewichtsverlust des Hauptfängers je Stripping-Fraktion in mg

O_H : Gesamtoberfläche des Hauptfängers in cm^2

\bar{F} : mittleres Flächengewicht einer Stripping-Fraktion in $mg Al/cm^2$

t : Bestrahlungsdauer in d

$\phi_{n,th}$: Fluß der thermischen Neutronen in $cm^{-2} sec^{-1}$

In den Abbildungen 3 bis 6 sind die aus drei Experimenten erhaltenen Verteilungskurven dargestellt. Auf der Abszisse ist jeweils die Eindringtiefe D_1 als Flächen-
gewicht in mg Al/cm^2 aufgetragen. Die Ordinaten sind auf gleiche Maxima der Gauß-
Verteilung normiert. Dabei entspricht eine Ordinateneinheit etwa folgenden, für
chemische Ausbeute korrigierten Zählraten bei Meßbeginn (in Imp/min):

Nuklid	Experiment 1	Experiment 2	Experiment 3
Ba-140	1 300	2 100	700
Sb-127	100	-	-

Die für die experimentellen Punkte angegebenen Fehlergrenzen ergeben sich als
Summe der relativen Einzelfehler von \bar{F} , der Abfallskurven-Analyse und der Korrek-
turen für chemische Ausbeute und Selbstabsorption. Sie stellen also maximale Ab-
weichungen dar. Bei nicht eingezeichneten Fehlergrenzen liegen die Abweichungen
innerhalb der die Punkte kennzeichnenden Kreise.

Man kann annehmen, daß die Reichweite einer isobaren Reihe normal verteilt ist
(vergleiche Seite 7). Keine der erhaltenen Verteilungskurven entspricht jedoch
einer reinen Gauß-Verteilung. Daher wurde der sich über die Reichweite hinaus er-
streckende Teil des Kurvenverlaufs nach der Methode der logarithmischen Differen-
tiation auf eine Gauß-Verteilung untersucht. Dieses von Preuss und Escarfail (19)
beschriebene Verfahren ermöglicht eine genauere Analyse als die Darstellung auf
Wahrscheinlichkeitsnetz. Als Beispiel ist in der Abbildung 7 die Auflösung der
Reichweiteverteilungskurve des Ba-140 aus dem Experiment 1 wiedergegeben.

Trägt man die Differenzen y_1^i der natürlichen Logarithmen der relativen Aktivitäten
aufeinanderfolgender Stripping-Fraktionen gegen die entsprechenden, äquidistanten
Fraktionsnummern i auf ($n_i - n_{i-1} = 1$), so erhält man beim Vorliegen einer Gauß-
Verteilung eine Gerade. Diese schneidet die durch $y_1^i = 0$ gehende Parallele zur
Abszisse im Punkte i_0 , dem Maximum der Gauß-Verteilung. Ihre Neigung entspricht
dem Wert $-1/\sigma_R^2$, wobei σ_R die Breite der Verteilung angibt: Halbwertsbreite
 $H_R = 2,355 \sigma_R$. Die Bestimmung der Geraden $y_1^i = a + b \cdot i$ erfolgte durch Ausgleichs-
rechnung nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate.

Im Fall des Sb-127 war vor dieser Analyse eine Korrektur für die Stripping-Ver-
schleppung durchzuführen. Sie geschah nach der Formel 1a auf Seite 10 mit dem Ver-
schleppungsfaktor $k = 0,80$.

In den Abbildungen 3 bis 6 ist der Verlauf der berechneten Gauß-Verteilung durch
gestrichelte Linien wiedergegeben. Der damit zusammenfallende experimentelle Ver-
lauf ist als ausgezogene Linie dargestellt. Beim Sb-127 ist die sich aus der Ver-
schleppungs-Korrektur ergebende "experimentelle" Verteilung punktiert gezeichnet.

Der strich-punktiert wiedergegebene Verlauf des Untergrundes wird später diskutiert. Er ergibt sich durch Subtraktion der berechneten Gauß-Verteilung von der experimentellen Verteilung.

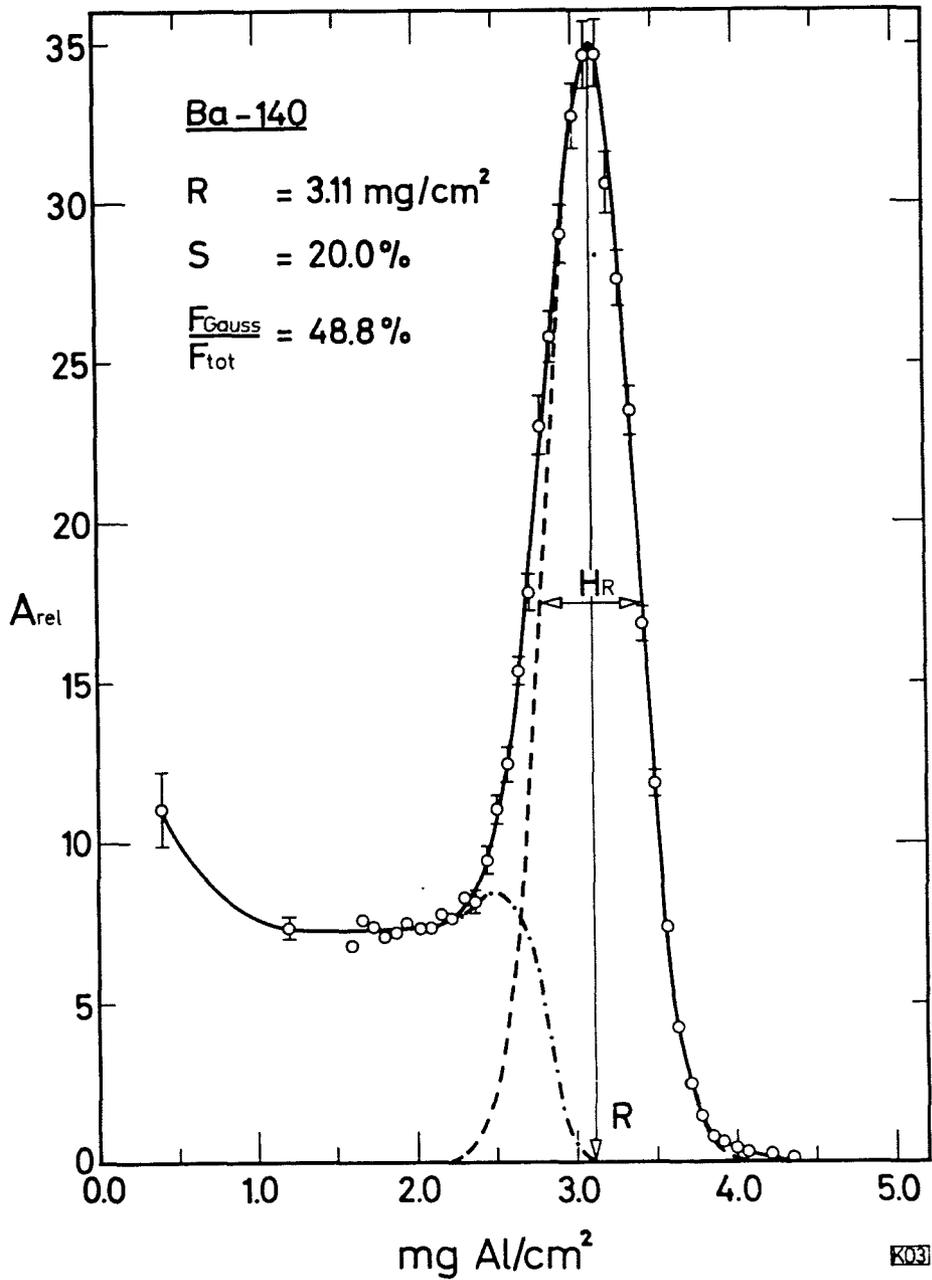


Abb. 3 Isobare Reichweiteverteilung des Ba-140, aus Experiment 1

- o : experimentelle Punkte mit Fehlergrenzen
- : experimenteller Verlauf
- : Verlauf der berechneten Gauß-Verteilung
- : Verlauf der berechneten Untergrund-Verteilung

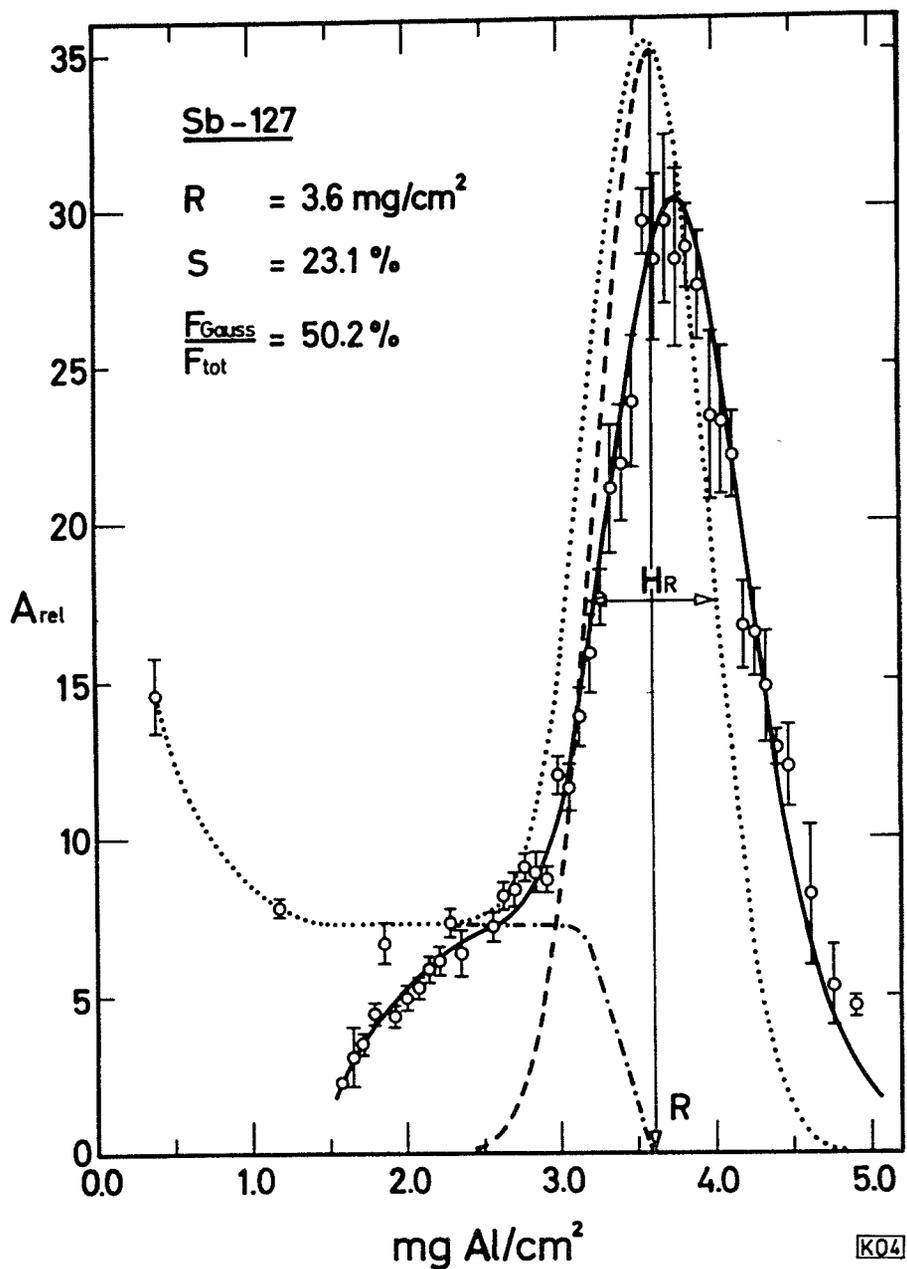


Abb. 4 Isobare Reichweiteverteilung des Sb-127, aus Experiment 1

- o : experimentelle Punkte mit Fehlergrenzen
- : experimenteller Verlauf
- : für Stripping-Verschleppung korrigierter experimenteller Verlauf
- : Verlauf der berechneten Gauß-Verteilung
- .-.-.- : Verlauf der berechneten Untergrund-Verteilung

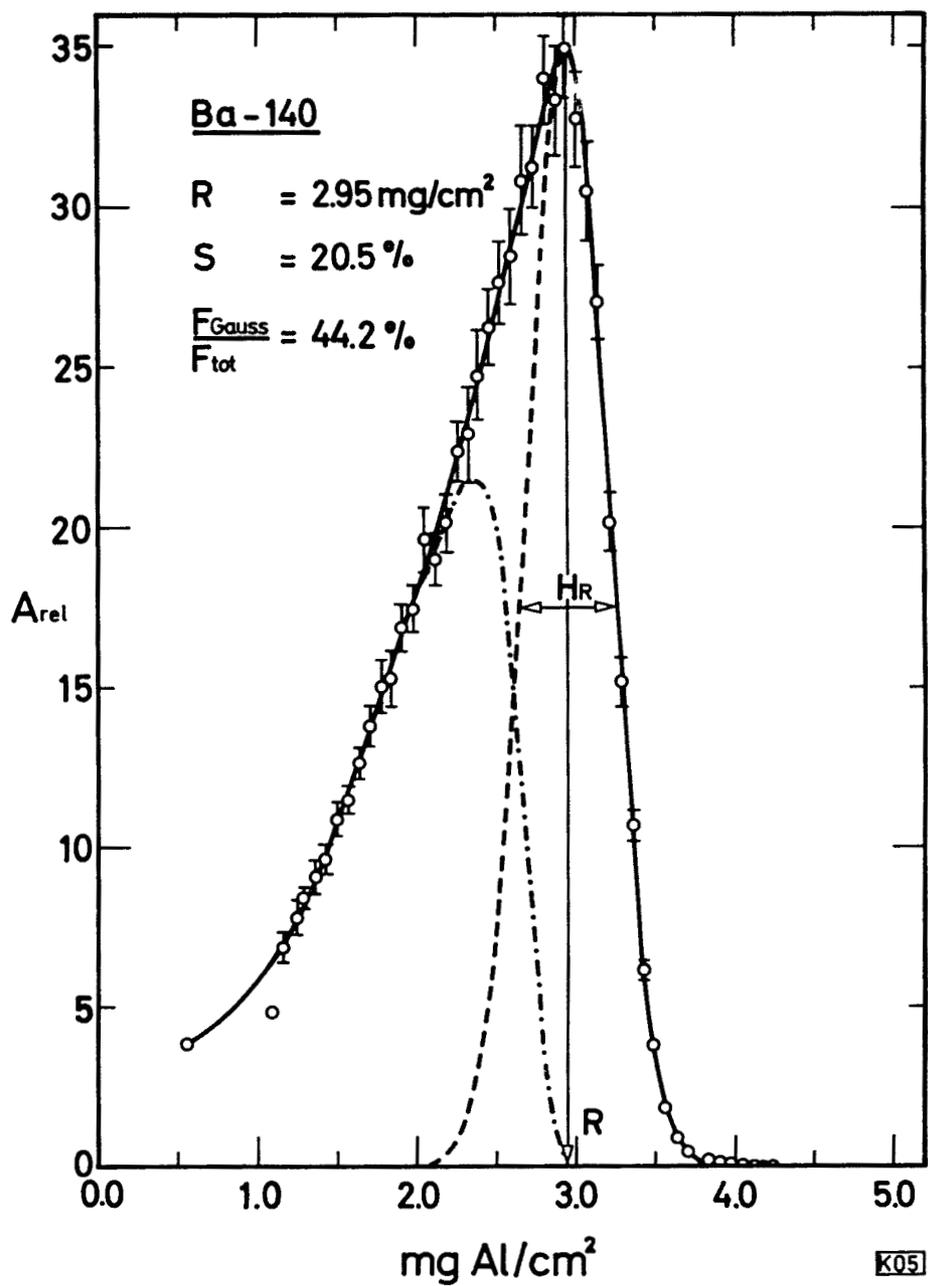


Abb. 5 Isobare Reichweiteverteilung des Ba-140, aus Experiment 2

- o : experimentelle Punkte mit Fehlergrenzen
- : experimenteller Verlauf
- - - : Verlauf der berechneten Gauß-Verteilung
- · - · - : Verlauf der berechneten Untergrund-Verteilung

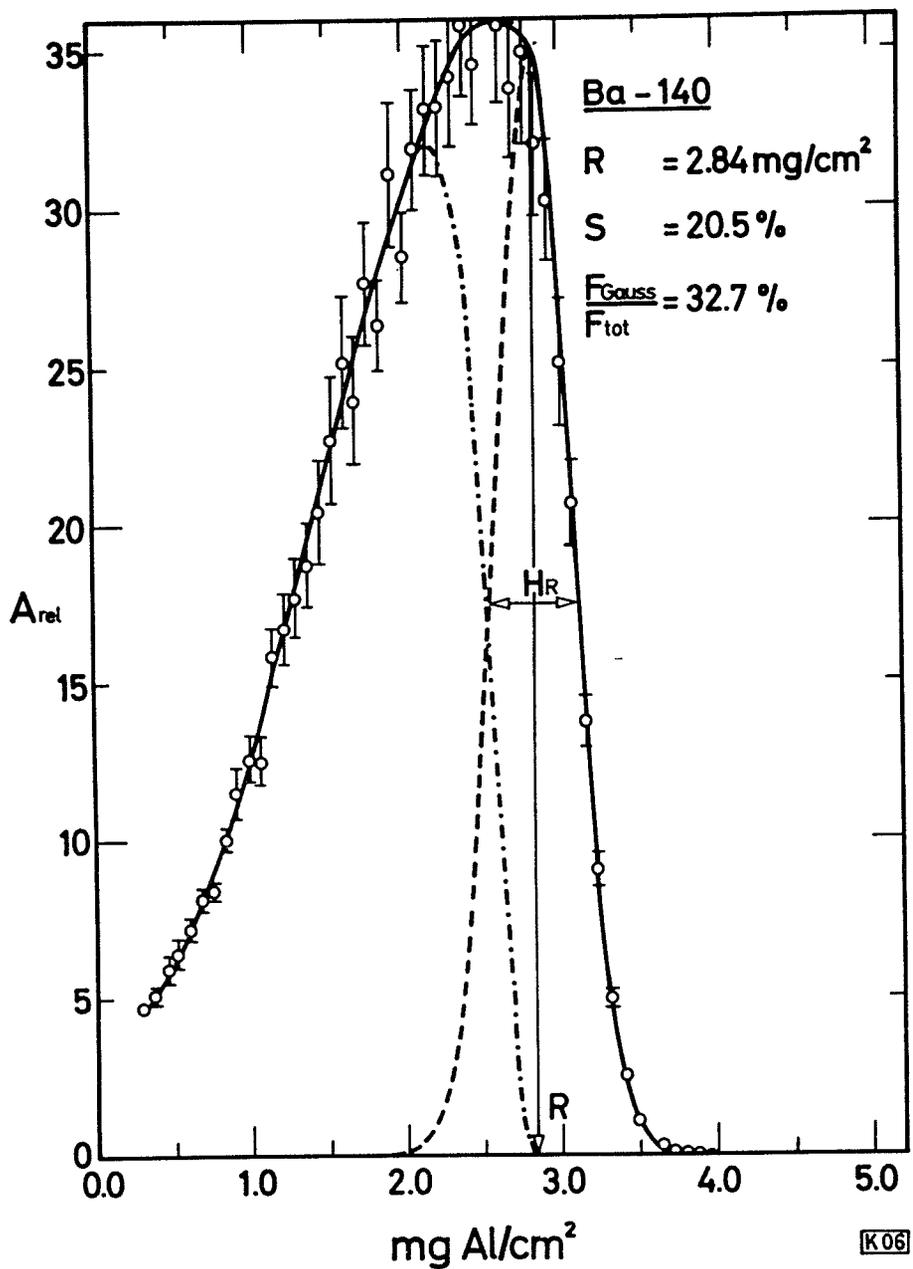


Abb. 6 Isobare Reichweiteverteilung des Ba-140, aus Experiment 3

- o : experimentelle Punkte mit Fehlergrenzen
- : experimenteller Verlauf
- : Verlauf der berechneten Gauß-Verteilung
- : Verlauf der berechneten Untergrund-Verteilung

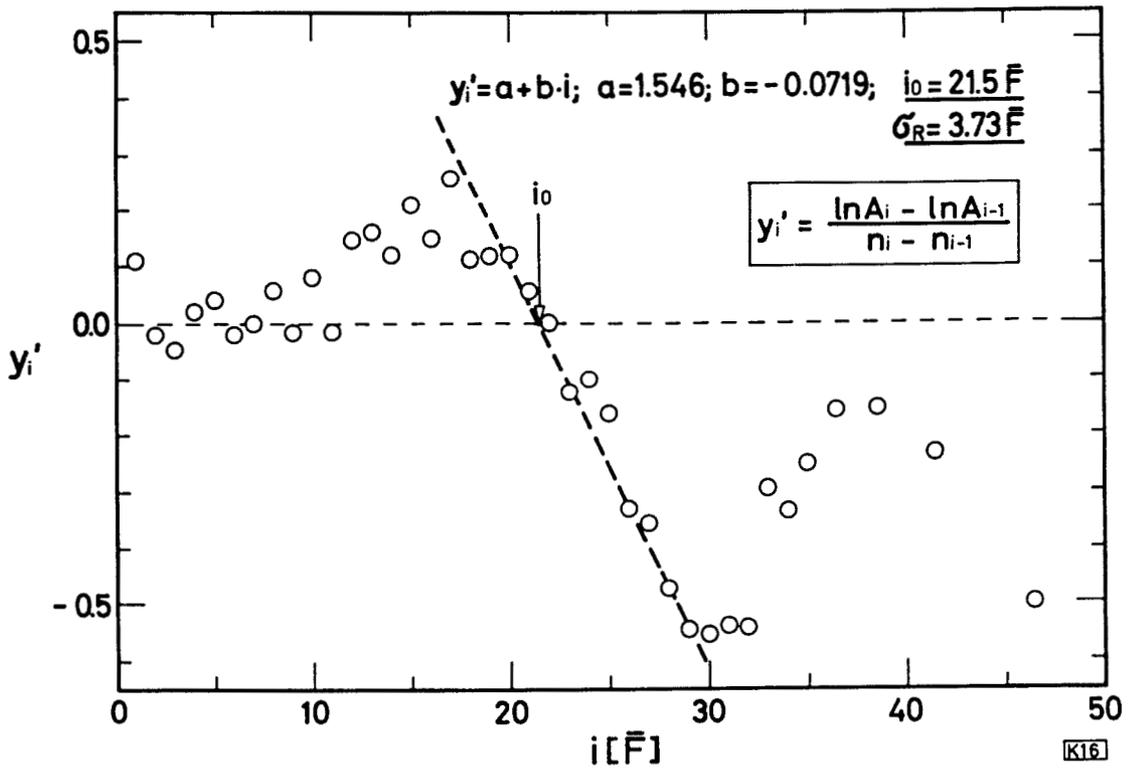


Abb. 7 Analyse der Reichweiteverteilungskurve des Ba-140, aus Experiment 1

c) Ergebnisse

In der Tabelle 4 sind die Ergebnisse der drei Reichweiteverteilungsexperimente zusammengestellt.

Tabelle 4

Experiment	Spaltprodukt	R (mg Al/cm ²)	S (%)	F _{Gauß} /F _{Tot} (%)
1	Sb-127	3,6 ± 0,2	23,1 ± 1,7	50,2
1	Ba-140	3,11 ± 0,15	20,0 ± 1,0	48,8
2	Ba-140	2,95 ± 0,10	20,5 ± 1,0	44,2
3	Ba-140	2,84 ± 0,10	20,5 ± 1,0	32,7
Mittelwerte für Ba-140 : R = (2,95 ± 0,10) mg Al/cm ² S = (20,3 ± 1,0) %				

Die für die mittlere Reichweite angegebenen Fehler setzen sich zusammen aus den Einzelfehlern der Gauß-Analyse (für i_0), des mittleren Flächengewichts \bar{F} einer Stripping-Fraktion und des Flächengewichts aller vor dem Hauptfänger vorhandenen Absorber (D_V und D_{Al}). Der Fehler der relativen Reichweitedispersion S besteht aus den Einzelfehlern der Gauß-Analyse (für σ_R) und der mittleren Reichweite R . Die in der Tabelle enthaltenen Quotienten $F_{Gau\beta}/F_{Tot}$ stellen den relativen Flächenanteil der Gauß-Verteilung an der Gesamtverteilung dar.

Eine Untersuchung der 50 Stripping-Fractionen des Experiments 1 ergab für Ag-111 keine nennenswert über der Nullrate liegenden Zählraten. Dieses Ergebnis ist auf eine Stripping-Verschleppung zurückzuführen. Den Beweis dafür ergab eine Aktivitätsbilanz. Dazu wurde das Verhältnis der absoluten Spaltproduktaktivitäten im gesamten Fänger⁺) experimentell ermittelt. Der Vergleich mit den entsprechenden berechneten Aktivitätsverhältnissen zeigt eine gute Übereinstimmung:

	experimentell	berechnet
$\frac{Ba-140}{Ag-111}$	18,1	18,7
$\frac{Sb-127}{Ag-111}$	2,6	2,8

Die Eigenschaften des "streuarmen" Kollimators konnten bei den Experimenten 2 und 3 folgendermaßen geprüft werden: die relativen Ba-140-Aktivitäten A_x auf den vier mittleren Blendenringen des Kollimators wurden experimentell bestimmt. Ihr Anteil an der Gesamtaktivität $\sum A_x$ auf allen vier Ringen und im Fänger läßt sich vereinfacht dadurch berechnen, daß man für eine Reihe von Targetpunkten über alle, einen bestimmten Blendenring x erfassenden Raumwinkel graphisch integriert. Die Ergebnisse der experimentellen Bestimmung und der Berechnung enthält Tabelle 5.

Tabelle 5

x (vom Target aus)		1	2	3	4	Fänger	
$\frac{A_x}{\sum A_x}$ (%)	gefunden	2	68,7 \pm 3	19,4 \pm 1	7,1 \pm 0,4	2,9 \pm 0,2	1,9 \pm 0,2
		3	68,0 \pm 3	19,6 \pm 1	7,1 \pm 0,4	2,8 \pm 0,2	2,5 \pm 0,2
	berechnet		58 \pm 9	25 \pm 3	9,6 \pm 1,2	4,7 \pm 0,7	2,7 \pm 0,4

+) Vorfänger, Stripping-Fractionen und Fänger-Rest

Ein Vergleich der Werte zeigt eine gute Übereinstimmung der Kollimatoreigenschaften bei den Experimenten 2 und 3.

Ferner wurde durch eine Aktivierungsanalyse nachgewiesen, daß der erste Blendenring des Kollimators beim Experiment 3 weniger als $2 \cdot 10^{-4}$ µg Pu-239, die Aluminiumoxydfolie ungefähr $2 \cdot 10^{-3}$ µg Pu-239 enthielt, also weniger als $2 \cdot 10^{-4}$ ‰, beziehungsweise $2 \cdot 10^{-3}$ ‰ des gesamten Target-Plutoniums.

2.2.3. Diskussion der Ergebnisse

a) Stripping-Methode

Ein Vergleich der im Abschnitt 2.2.1. enthaltenen Ergebnisse über die Stripping-Verschleppung mit den Resultaten anderer Autoren ist nur qualitativ möglich, da bisher keine quantitativen Angaben veröffentlicht wurden.

Brown und Oliver (01) zeigten, daß Spaltprodukte wie Ba und Cs durch Stripping aus Aluminiumfängern einwandfrei zu isolieren sind.

Hingegen fanden sie bei der Untersuchung schwerer Rückstoßkerne, daß Au und Hg aus Aluminiumfängern durch Stripping nicht entfernt werden können (20). Rahman (21) gelangte bei der Anwendung der Stripping-Technik auf Sn und Cd mit Aluminiumfängern zu Ergebnissen, die sich ebenfalls durch eine Verschleppung interpretieren lassen.

Aras et al. (02) erhielten bei der Untersuchung der Reichweiteverteilung von Spaltprodukten mittels der Stripping-Methode für Ag-111 eine Reichweiteverteilungskurve. Diese bestand aus zwei Peaks, die durch insgesamt 12 experimentelle Punkte belegt sind. Aras und Gordon (22) betonen jedoch die Unsicherheit dieses Ergebnisses: "However, no firm conclusion can be drawn ... until we obtain better counting statistics on the Ag-111 points." Die demnach niedrige Aktivität der Ag-111-Präparate rührt wahrscheinlich von einer nicht berücksichtigten Stripping-Verschleppung her.

b) Reichweiten

Die durch eine Analyse der Verteilungskurven ermittelte Reichweite des Ba-140 von $(2,95 \pm 0,10)$ mg Al/cm² stimmt innerhalb der Fehlergrenzen mit den entsprechenden Werten anderer Autoren überein. Die Reichweite von Ba-140 in Aluminium bei der Spaltung schwerer Kerne mit thermischen Neutronen betragen in mg Al/cm² nach

Brown und Oliver	(01) :	$2,82 \pm 0,11$	(U-235)
Alexander und Gazdik	(23) :	$2,98 \pm 0,01$	(U-235)
Finkle et al.	(24) :	$2,75 \pm 0,03$	(U-235)
Münzel und Ishimori	(25) :	$3,04 \pm 0,03$	(Pu-239)

Beim Vergleich ist zu berücksichtigen, daß nach Finkle et al. (23) die Reichweiten schwerer Spaltprodukte bei der Spaltung von Pu-239 um ungefähr 5% höher liegen als die entsprechenden Reichweiten bei der Spaltung von U-235. Für Sb-127 liegt kein direkter Wert der Reichweite in Aluminium vor. Rechnet man die von Katcoff et al. (03) bei der Spaltung von Pu-239 mit thermischen Neutronen erhaltenen Reichweiten in Luft auf Reichweiten in Aluminium um (näheres siehe Abschnitt 2.3.2.), so ergeben sich folgende Werte:

	cm Luft	mg Al/cm ²	diese Arbeit (mg Al/cm ²)
Sb-127	2,09 ± 0,03	3,40 ± 0,15	3,6 ± 0,2
Ba-140	1,92 ± 0,03	3,12 ± 0,15	2,95 ± 0,10

Auch hier ist innerhalb der Fehlergrenzen eine Übereinstimmung vorhanden.

c) Reichweiteverteilung

Die für Sb-127 zu (23,1 ± 1,7) % bestimmte relative Reichweitedispersion ist höher als die des Ba-140 mit (20,3 ± 1,0) %. Ob dieser Unterschied signifikant ist, kann nicht entschieden werden. Die Unsicherheit des Wertes für Sb-127 ist eventuell durch systematische Fehler der Korrektur für eine Stripping-Verschleppung größer als der angegebene Fehler. Um eine Entscheidung darüber treffen zu können, ob die Reichweitedispersion eines Spaltproduktes eine Funktion seiner Bildungswahrscheinlichkeit ist (vergleiche Seite 8), sollten weitere Experimente mit größerer Genauigkeit ausgeführt werden.

Möglicherweise hängt die Reichweitedispersion außerdem von der Nukleonen- und Ladungszahl des Targetkerns ab. Einen Hinweis darauf gibt folgender Vergleich. Die für Ba-140 ermittelte Reichweitedispersion ist um den Faktor 1,16 größer als die nach Brown und Oliver (01) bei der Spaltung von U-235 mit thermischen Neutronen (siehe Tabelle 1).

Die von Katcoff et al. (03) bei der Spaltung von Pu-239 ermittelten Dispersionen liegen um den Faktor 1,12 höher als die von Petrzhak et al. (05) für die Spaltung von U-233 angegebenen Werte.

d) Niederenergetischer Untergrund

Bei allen Reichweiteverteilungskurven tritt ein sich bis zur mittleren Reichweite erstreckender, sogenannter niederenergetischer Untergrund auf. Er ist in den Abbildungen 3 bis 6 durch strich-punktierte Linien angedeutet. Sein relativer Anteil U an der Fläche unter der experimentellen Gesamtverteilung in % beträgt

$$U = 100 - \frac{F_{\text{Gauß}}}{F_{\text{Tot}}} \quad (\text{in } \%)$$

In Abbildung 8 ist der Verlauf dieses Untergrundes bei der Reichweiteverteilungskurve des Ba-140 für alle drei Experimente wiedergegeben.

Dabei wurden die Kurven a (Experiment 1) und b (Experiment 2) hinsichtlich Fläche und Reichweite auf die Kurve c (Experiment 3), normiert. Die unterschiedliche Form der Kurven b und c gegenüber der Verteilung a ist augenfällig. Normiert man jedoch das Maximum der Kurve b auf das der Kurve a, so zeigt der rechte Ast beider Verteilungen einen identischen Verlauf. Der linke Ast der auf a normierten Verteilung b ist in der Abbildung mit d bezeichnet. Subtrahiert man ihn von der Kurve a, so erhält man den annähernd linear verlaufenden Teil e.

Die Entstehung des niederenergetischen Untergrundes kann auf folgende Ursachen zurückgeführt werden:

1. Kontamination des Kollimatorinnern und des Fängers durch Plutonium aus dem Target.
2. Streuung der Spaltprodukte an der Wand des Kollimators. Sie soll als Wandstreuung bezeichnet werden.
3. Streuung der Spaltprodukte im Target, in dessen Abdeckung und im Gas zwischen Target und Fänger. Sie wird als direkte Streuung bezeichnet.

Die unterschiedlichen Effekte werden im folgenden unter Berücksichtigung der experimentellen Ergebnisse diskutiert.

1. Kontamination

Sie kann auftreten durch mechanische Ablösung eines Target-Teils, durch Verdampfen von Plutonium aus dem Target als Folge der Abbremsung von Spaltprodukten, durch den α -Rückstoß der Plutonium-Kerne und durch Übertragung des Spaltprodukt-Impulses auf die Targetkerne. Das Ergebnis einer Aktivierungsanalyse zeigte, daß beim Experiment 3 weder der Kollimator noch die Aluminiumoxydfolie nennenswert durch Pu-239 kontaminiert war (siehe Seite 21). Demnach läßt sich die Kontamination durch eine Targetabdeckung von ungefähr $20 \mu\text{g Al/cm}^2$ verhindern. Da diese Abdeckung bei allen Experimenten vorhanden war, ist eine Kontamination des Kollimatorinnern und des Fängers auch bei den Experimenten 1 und 2 mit großer Wahrscheinlichkeit auszuschließen.

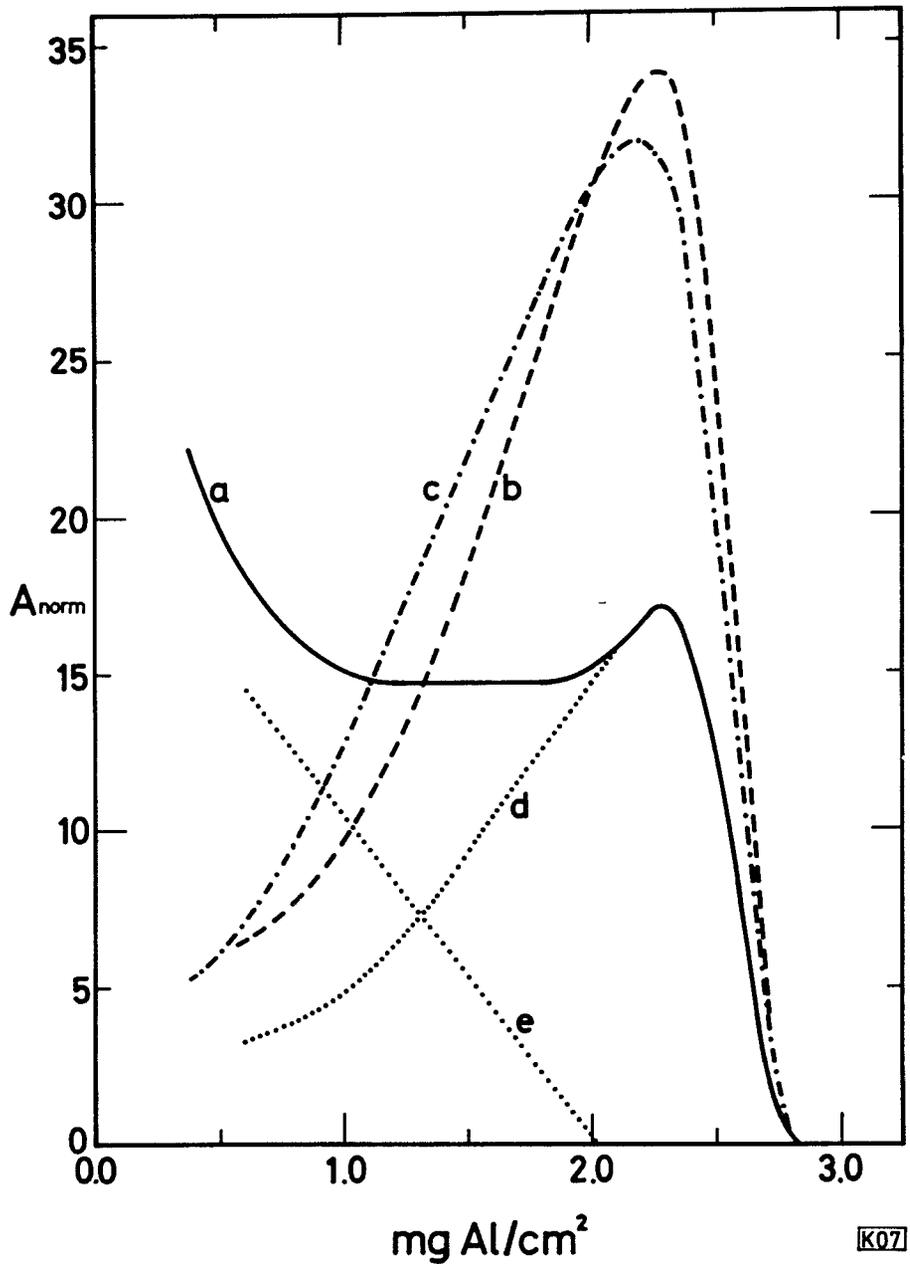


Abb. 8 Niederenergetischer Untergrund der Reichweiteverteilungskurven des Ba-140 aus den Experimenten 1,2 und 3; auf gleiche Flächen und Reichweiten normiert.

a : Experiment 1

b : Experiment 2

c : Experiment 3

d : linker Ast der auf das Maximum von a normierten Verteilung b

e : nach Subtraktion des Astes d von der Verteilung a verbleibender Rest

2. Wandstreuung

Sie sollte abhängen von der effektiven Oberfläche O_{eff} der Kollimatorwandung und von der Targetoberfläche O_T . Als O_{eff} ist derjenige Teil der Kollimatorwand zu verstehen, von dem aus Spaltprodukte durch Einfachstreuung in den Fänger gelangen können. Definiert man die Größe W als Parameter der Wandstreuung folgendermaßen (mit dem Radius r des Kollimators und dessen Höhe h)

$$W = \frac{O_{\text{eff}}}{O_T} = \frac{2 r \pi h}{r^2 \pi} = 2 \frac{h}{r} ,$$

so gilt für den Anteil U_W des durch Wandstreuung hervorgerufenen Untergrundes an der gesamten Untergrundverteilung

$$U_W = f(W)$$

Der wesentliche Unterschied zwischen Experiment 1 und den Experimenten 2 und 3 besteht darin, daß bei letzteren eine Wandstreuung weitgehend ausgeschlossen wurde. Der Wert des Parameters W war gegenüber dem Experiment 1 auf 0,4 % reduziert.

3. Direkte Streuung

Dieser Effekt ist quantitativ sehr schwierig zu erfassen. Er hängt sowohl vom Flächengewicht als auch von der Nukleonen- und Kernladungszahl des Absorbers ab. Sein Anteil an der gesamten Untergrundverteilung soll als U_S bezeichnet werden.

Aus dieser Betrachtung geht hervor, daß der niederenergetische Untergrund bei den Experimenten 2 und 3 fast ausschließlich durch direkte Streuung entstanden ist. Beide Verteilungen zeigen einen ähnlichen Verlauf. Der Untergrund beim Experiment 1 hingegen kann als komplex angesehen werden. Es setzt sich zu ungefähr gleichen Teilen aus Wandstreuung und direkter Streuung zusammen (vergleiche Abbildung 8, Kurve e beziehungsweise d).

Unter Ausschluß einer Kontamination gilt für den Anteil des niederenergetischen Untergrundes an der experimentellen Reichweiteverteilung

$$U = U_W + U_S = f(W) + U_S$$

Zum Vergleich sind in Tabelle 6 die für diesen Untergrund charakteristischen Größen zusammengestellt. Sie beziehen sich auf Reichweiteverteilungskurven des Ba-140 aus verschiedenen Experimenten.

Tabelle 6

Experiment	Brown und Oliver (Ol)	diese Arbeit		
		1	2	3
Targetabdeckung ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)	-	20 Al	40 Al	20 Al, 100 Al ₂ O ₃
Flächengewicht des Gases im Kollimator ($\mu\text{g}/\text{cm}^2$)	40 H ₂	(niedrig) Luft	15 Luft	80 Luft
W	12	20	0,08	0,08
U(%)	22	51	56	67
U _W (%)	16	- 26 ⁺)	1 ⁺)	1 ⁺)
U _S (%)	6 ⁺)	25	55	66

+): abgeschätzte Werte

Die unterschiedlichen Werte für U_S bei den Experimenten 2 und 3 erklären die Abweichung im Quotienten $A_x / \sum A_x$ für den Fänger, siehe Tabelle 5. Der Wert für U_S beim Experiment von Brown und Oliver wurde nach Brown (20) von Milton geschätzt. Ein Vergleich mit dem Experiment 1 dieser Arbeit zeigt, daß das Verhältnis $q = U_W/W$ in guter Näherung konstant ist.

Aus den bisher vorliegenden Ergebnissen kann gefolgert werden: Bei der Untersuchung der Reichweiteverteilung von Spaltprodukten mit Versuchsanordnungen des Typus a (vergleiche Abbildung 1) tritt ein niederenergetischer Untergrund auf. Dieser besteht aus den Anteilen einer Wandstreuung und einer direkten Streuung. Letztere nimmt stärker mit der Nukleonen- und Kernladungszahl des Absorbers als mit dessen Flächengewicht zu. Die Wandstreuung gehorcht im Bereich der geschilderten Kollimator-Abmessungen der Beziehung $U_W \approx q W$, mit $q \approx 1,3^x$). Dadurch entsteht für den Experimentator folgendes Dilemma.

x) Unter der Voraussetzung, daß beim Experiment von Brown und Oliver keine Kontamination stattfand.

Um eine gute Kollimierung der Spaltprodukte zu erreichen, sollte das Verhältnis h/r möglichst groß sein. Die Vergrößerung dieses Quotienten führt jedoch zu einer erhöhten Wandstreuung und somit zu einer Verschmierung der Reichweiteverteilungskurve.

Abschließend ist zu betonen, daß die hier durchgeführte Diskussion des niederenergetischen Untergrundes nur als eine vorläufige Deutung betrachtet werden darf. Eine endgültige Interpretation ist nur durch speziell auf dieses Problem ausgerichtete Experimente zu erreichen.

2.3. Vergleich und Zusammenfassung

Das Ziel aller Untersuchungen der Reichweiteverteilung von Spaltprodukten ist, Aufschlüsse über die Dispersion der kinetischen Energie einzelner Primärfragmente zu erhalten. Diese Dispersion kann aus den experimentellen Ergebnissen nur unter Berücksichtigung mehrerer Korrekturen erhalten werden.

2.3.1. Korrekturen

Bei den folgenden Betrachtungen wird vorausgesetzt, daß sowohl die Verteilung der kinetischen Energie E als auch die der Reichweite R einer Gauß-Verteilung entspricht, deren Halbwertsbreite als H und deren Standardabweichung als σ bezeichnet wird. Damit ist die relative Dispersion D der kinetischen Energie definiert als

$$D = \frac{H_E}{E} = \frac{2,355 \sigma_E}{E}$$

die relative Dispersion S der Reichweite als

$$S = \frac{H_R}{R} = \frac{2,355 \sigma_R}{R}$$

Die vom Spaltprozess herrührende Dispersion D_F der kinetischen Energie der Primärfragmente ergibt sich aus der Gesamtdispersion D_S der kinetischen Energie. Diese ist für die durch Verdampfung prompter Neutronen entstehende Dispersion D_N zu korrigieren:

$$D_F^2 = D_S^2 - D_N^2 \quad (3)$$

Petrzhak et al. (05) führten eine vereinfachte Berechnung durch und erhielten den Wert $D_N = 3\%$ für schwere und leichte Fragmente.

D_S ergibt sich mit der Reichweite-Energie-Beziehung 4 folgendermaßen:

$$E = c R^2 \quad (4)$$

$$\frac{\sigma E}{\sigma R} = \frac{d E}{d R} = 2 c R$$

$$\sigma_E = 2 c R \sigma_R$$

$$D_S = \frac{2,355 \sigma_E(S)}{E} = 2 \frac{2,355 \sigma_R(S)}{R}$$

$$D_S = 2 S_S \quad (5)$$

S_S ist also der von der Spaltung und Neutronenverdampfung herrührende Teil der Reichweitedispersion. Man erhält ihn aus der für Targetdicke und Kollimatorgeometrie korrigierten Reichweitedispersion S_{korr} und der durch den Abbremsprozess im Absorber verursachten Reichweitedispersion S_A :

$$S_S^2 = S_{\text{korr}}^2 - S_A^2 \quad (6)$$

Für S_{korr} gilt die Beziehung:

$$S_{\text{korr}}^2 = S^2 - S_G^2 \quad (7)$$

Dabei ist S die für Targetdicke korrigierte Reichweitedispersion. Diese ergibt sich aus der experimentell ermittelten Dispersion S_{exp} und dem Dispersionsanteil S_T , der durch Abbremsen der Spaltprodukte im Target entsteht:

$$S = S_{\text{exp}} - S_T \quad (8)$$

S_G ist der Dispersionsanteil, der aus einer Vergrößerung der Weglänge im Kollimator resultiert. Aus 7 und 8 folgt für S_{korr} :

$$S_{\text{korr}} = (S_{\text{exp}} - S_T)^2 - S_G^2 \quad (9)$$

Good und Wollan (07), sowie Petrzhak et al. (05) ermittelten S_{korr} unter Verwendung der in Tabelle 7 aufgeführten Korrekturgrößen. Einige dieser Werte wurden von den Autoren nicht explizit angegeben. Sie konnten jedoch aus vorhandenen Angaben nach 9 berechnet werden.

Tabelle 7

Autor	S _T (%)		S _G (%)	
	leichte Fragmente	schwere Fragmente	leichte Fragmente	schwere Fragmente
Good und Wollan (07)	4,8	6,1	1,4	1,4
Petrzhak et al. (05)	1,3	1,3	1,3	1,6

Die bei der Abbremsung im Fänger entstehende Reichweitedispersion S_A setzt sich zusammen aus den Dispersionsanteilen der Kernkollision S_k und der Ionisation S_e. Letzterer ist nach Bohr (26) gegenüber S_k zu vernachlässigen. Als Vereinfachung folgt daraus:

$$S_A = S_k \quad (10)$$

Für die durch Kernkollisionen verursachte Reichweitedispersion gilt nach Bohr (27):

$$S_k^2 = \text{const.} \left(\frac{R_k}{R}\right)^2 \frac{M_1 \cdot M_2}{(M_1 + M_2)^2} \quad (11)$$

In dieser Formel bedeuten:

- R_k : Anteil der Abbremsung durch Kernkollisionen an der Gesamtreichweite
- R : experimentell ermittelte Gesamtreichweite
- M₁ : Kernmasse des Spaltprodukts
- M₂ : Kernmasse der Absorberatome

S_A kann nach 10 und 11 direkt berechnet oder aus einer graphischen Analyse erhalten werden. Aus 6, 10 und 11 ergibt sich die Beziehung:

$$S_{\text{korr}}^2 = S_S^2 + \text{const.} \left(\frac{R_k}{R}\right)^2 \frac{M_1 \cdot M_2}{(M_1 + M_2)^2} \quad (12a)$$

oder in anderer Form:

$$S_{\text{korr}}^2 \left(\frac{R}{R_k}\right)^2 = S_S^2 \left(\frac{R}{R_k}\right)^2 + \text{const.} \frac{M_1 \cdot M_2}{(M_1 + M_2)^2} \quad (12b)$$

12a und 12b stellen Geradengleichungen mit dem Ordinatenabschnitt S_S^2 beziehungsweise $S_S^2 (R/R_k)^2$ dar. Petrzhak et al. (05) führten die graphische Analyse für S_S nach 12 a durch. Dabei wurde R/R_k für die verwendeten Absorber als konstant betrachtet. Good und Wollan (07) ermittelten S_S nach 12b und berechneten R/R_k für jeden der verwendeten Fänger nach Bohr (27).

Als Zusammenfassung des beschriebenen Korrekturganges soll untenstehende Formel dienen. Sie ergibt sich aus den Gleichungen 3,5,6 und 9. Darunter sind zur Veranschaulichung der Größenordnungen als numerisches Beispiel die Werte für Ba-140 (Luft-Absorber) von Petrzhak et al. (05) eingesetzt (in %). Diese wurden teilweise aus angegebenen Daten berechnet.

$$D_F = \left[4 \left(\left[S_{\text{exp}} - S_T \right]^2 - S_G^2 - S_A^2 \right) - D_N^2 \right]^{1/2} \quad (13)$$

$$D_F = \left[4 \left(\left[11,3 - 1,3 \right]^2 - 1,6^2 - 8,0^2 \right) - 3,0^2 \right]^{1/2} = 11,2 \%$$

Die unter Good und Wollan in Tabelle 1 aufgeführten Werte von D_F sind nicht für Neutronenverdampfung korrigiert.

2.3.2. Vergleich der Ergebnisse

In der Abbildung 9 sind die nach Abschnitt 2.3.1. mit den Werten aus Tabelle 7 korrigierten absoluten Reichweitedispersiven $H_{R(\text{korr})}$ in Luft und Aluminium dargestellt. Dabei ist

$$H_{R(\text{korr})} = R \cdot S_{\text{korr}}$$

Auf der Abszisse sind die Nukleonenzahlen A der Spaltprodukte aufgetragen. Beide Ordinatenachsen sind reichweiteäquivalent normiert nach der Beziehung

$$1 \text{ cm Luft} = 1,6 \text{ mg Al/cm}^2$$

Sie folgt aus der Bragg'schen Regel:

$$R_{\text{Al}} = \left(\frac{A_{\text{Al}}}{A_{\text{Luft}}} \right)^{1/2} \cdot R_{\text{Luft}} = 1,36 R_{\text{Luft}} \text{ (mg/cm}^2\text{)},$$

sowie aus den Ergebnissen von Alexander und Gazdik (23):

$$R_{\text{Al}} = (1,35 \pm 0,05) R_{\text{Luft}} \text{ (mg/cm}^2\text{)}.$$

Dabei ist

$$1 \text{ mg Luft/cm}^2 = 0,83 \text{ cm Luft (20 } ^\circ\text{C, 760 Torr).}$$

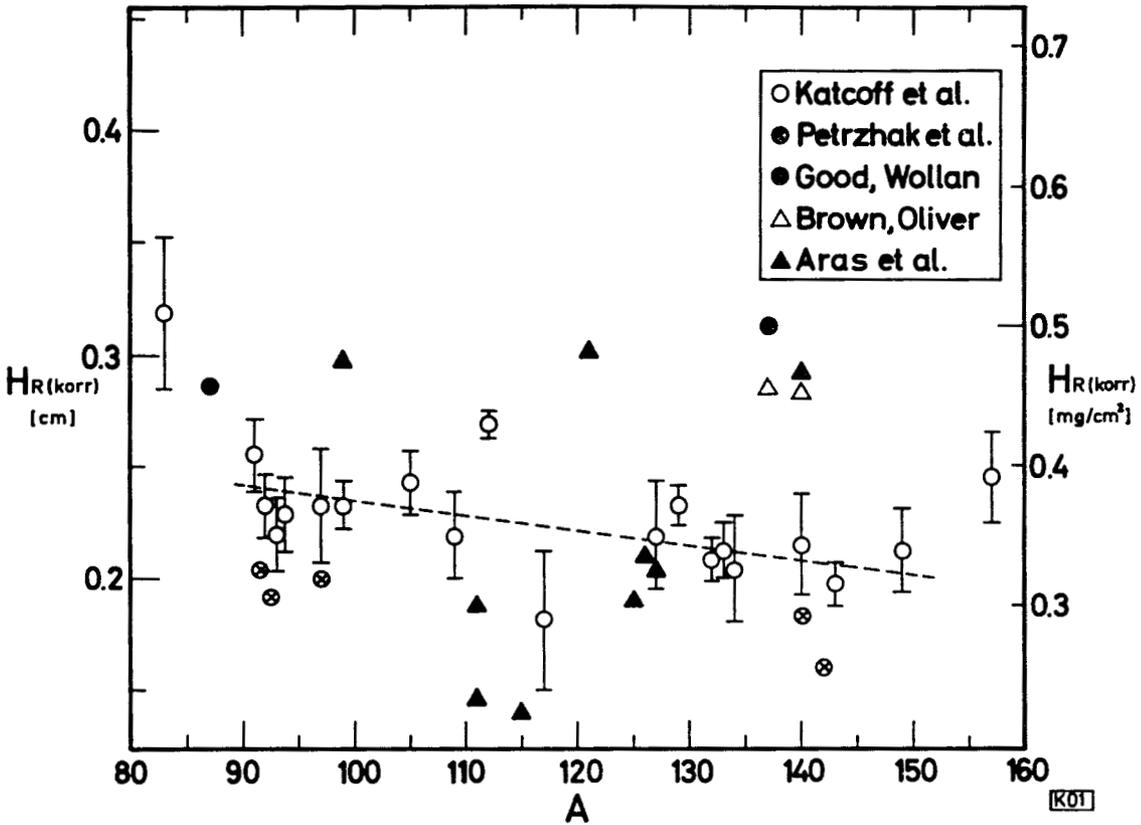


Abb. 9 Absolute Reichweitedispersionen verschiedener Autoren, korrigiert für Targetdicke und Kollimatorgeometrie. Die Ordinaten sind auf gleiche Abbremsseigenschaften der Absorber normiert.

Linke Skala : cm Luft

Rechte Skala : mg Al/cm²

----- : Gerade für die Werte von Katcoff et al. (Ausgleichsrechnung)

Um eine Aussage über die Neigung der in Abbildung 9 wiedergegebenen Geraden machen zu können, wurde folgende theoretische Abschätzung durchgeführt. Aus den entsprechenden Gleichungen des Abschnitts 2.3.1. folgt:

$$S_{\text{korr}}^2 = S_S^2 + S_A^2 \quad (\text{nach 6})$$

$$H_{R(\text{korr})}^2 = H_{R(S)}^2 + H_{R(A)}^2 \quad (\text{nach Seite 7})$$

$$H_{R(A)}^2 = c^{\dagger} R_k^2 m \quad (\text{nach 10 und 11})$$

$$\text{mit } m = \frac{M_1 \cdot M_2}{(M_1 + M_2)^2}$$

Führt man für schwere und leichte Fragmente die Indices h beziehungsweise l ein, so ist das Verhältnis Q der absoluten, korrigierten Reichweitedispersionen für schwere und leichte Fragmente gegeben durch:

$$Q^2 = \frac{H_{R(S)h}^2 + c^{\dagger} R_{k(h)}^2 m_h}{H_{R(S)l}^2 + c^{\dagger} R_{k(l)}^2 m_l} \quad (14a)$$

Bei Luftabsorbern ist $m_h \approx 0,086$ und $m_l \approx 0,123$. Die nach Bohr (27) zu berechnenden Werte für c^{\dagger} und R_k betragen:

$$\begin{aligned} c^{\dagger} &\approx 4,15 \\ R_{k(h)} &\approx 0,88 \text{ cm Luft} \\ R_{k(l)} &\approx 1,20 \text{ cm Luft} \end{aligned}$$

Damit ist

$$Q^2 \approx \frac{H_{R(S)h}^2 + 0,28}{H_{R(S)l}^2 + 0,73} \quad (14b)$$

Für eine positive Neigung der erwähnten Geraden müßte nach 14b gelten:

$$Q^2 > 1, \text{ also } \frac{H_{R(S)h}}{H_{R(S)l}} > \left(1 + \frac{0,45}{H_{R(S)l}^2}\right)^{1/2}$$

Unter der sicher richtigen Voraussetzung, daß $D_S < 20\%$, folgt mit $R_1 \approx 2,5$ cm Luft für eine positive Geradenneigung:

$$\frac{H_{R(S)h}}{H_{R(S)l}} > 3,0 \quad (15)$$

Die absoluten Reichweitedispersiven H_R können durch die absoluten Energiedispersiven H_E ersetzt werden (vergleiche Seite 28):

$$\frac{H_{R(S)h}}{H_{R(S)l}} = \frac{H_{E(S)h}}{H_{E(S)l}} \cdot \frac{R_h \cdot E_l}{R_l \cdot E_h}$$

Mit

$$\frac{R_h \cdot E_l}{R_l \cdot E_h} = 1,1 \pm 0,1$$

ist die Bedingung 15 wiederzugeben als:

$$\frac{H_{E(S)h}}{H_{E(S)l}} > 2,5 \quad \text{für} \quad \frac{H_{R(korr)h}}{H_{R(korr)l}} > 1$$

Nach den bisherigen Vorstellungen über den Ablauf der Spaltung ist jedoch die vom Spaltprozess herrührende absolute Dispersion $H_{E(S)}$ der kinetischen Energie komplementärer Fragmente ungefähr gleich. Demnach sollte die Gerade eine negative Neigung besitzen.

Dieser Voraussage entsprechen die Werte von Katcoff et al. (03) und von Petrzhak et al. (05), vergleiche Abbildung 9. Der Verlauf von $H_{R(korr)}$ mit A zeigt in beiden Fällen eine annähernd gleiche negative Neigung.

Dagegen weisen die Ergebnisse von Aras et al. (02) starke Streuungen auf. Diese sind möglicherweise durch die auf Seite 21 diskutierten experimentellen Unsicherheiten zu erklären. Der Wert von Good und Wollan (07) für Br-87 deckt sich ungefähr mit den Ergebnissen von Petrzhak et al. und Katcoff et al. Demgegenüber liegt der Wert für J-137 wesentlich zu hoch ($Q = 1,1$). Ein Grund dafür könnte in der Messung der verzögerten Neutronenstrahler liegen. So treten zum Beispiel im Verhältnis der Sättigungsaktivitäten der 22 sec - und 55 sec - Perioden für verschiedene Absorbergase Abweichungen bis zu 40% auf. Außerdem sei darauf hingewiesen, daß diese Autoren für ihre experimentelle Anordnung die Voraussetzung machten, daß keine bereits im Absorbergas abgestoppten Spaltprodukte an den festen Fänger gelangen. Im Gegensatz dazu gingen Katcoff et al. und andere

Autoren bei ihren Experimenten (vergleiche Abbildung 1) davon aus, daß die im Gas zwischen zwei Kunststoff-Folien abgestoppten Spaltprodukte auf der nächstliegenden Folie gesammelt werden.

Aus den hier dargelegten Gründen sollen die Ergebnisse von Aras et al. (02), sowie von Good und Wollan (07) in die weiteren Betrachtungen nicht einbezogen werden.

Die mit Aluminiumfängern bestimmten Reichweitedispersionen weichen von den mit gasförmigen Absorbern ermittelten stark ab. Diese Abweichung ist durch eine Zunahme der Nukleonenzahl des Absorbers allein nicht zu erklären. So steigt zum Beispiel S_{korr} bei Ba-140 nach Petrzhak et al. (05) von 9,9% für Luft ($\bar{A} = 14,5$) auf 11,4% für Argon ($A = 40$) an. Die entsprechenden Werte liegen bei der Verwendung von Aluminiumfängern ($A = 27$) nach Brown und Oliver (01) und nach den Ergebnissen dieser Arbeit zwischen 16% und 20%.

Als Ursache dieser Unterschiede sind zwei Möglichkeiten denkbar:

- a) Sicherlich werden bei differentiellen Reichweiteexperimenten mit gasförmigen Absorbern (vergleiche Abbildung 1,b) nicht alle zwischen den Kunststoff-Folien gestreuten Spaltprodukte erfaßt. Dazu wäre es nötig, außer den Folien auch die Kollimatorwand radiochemisch zu analysieren. Bei Experimenten mit festen Fängern hingegen (vergleiche Abbildung 1,a) werden alle im Absorber gestreuten Spaltprodukte in die Analyse einbezogen. Daher wird möglicherweise bei Experimenten mit gasförmigen Fängern eine geringere Reichweitedispersion vorgetäuscht. Sie müßte jedoch bei der Bestimmung von S_S nach der graphischen Auswertung (vergleiche Seite 29) durch einen ebenfalls erniedrigten Wert für S_A weitgehend kompensiert werden.
- b) Die Streuung von Spaltprodukten ist beim Abbremsen in festen Absorbern größer als in gasförmigen. Diese Annahme wird durch die Ergebnisse von Gilat und Alexander (28) gestützt. Sie fanden bei der Untersuchung schwerer Rückstoßkerne unter gleichen Bedingungen für Helium- und Aluminiumabsorber folgende Reichweitedispersionen

$$\text{He} : 24\% \quad ; \quad \text{Al} : 57\%$$

Obwohl die kinetische Energie dieser Kerne um den Faktor 0,05 bis 0,1 niedriger ist als die der Spaltprodukte, ergibt der Vergleich mit den Reichweitedispersionen von Spaltprodukten eine qualitative Übereinstimmung. Als Kriterium dient dabei das Verhältnis $S_{\text{Al}}/S_{\text{He}}$ der Dispersionen in Aluminium und Helium:

Gilat und Alexander (28)

Brown und Oliver (01)

Petrzhak et al. (05)

$$\frac{S_{Al}}{S_{He}} = 1,5$$

$$\frac{S_{Al}}{S_{He}} = 2,3$$

Der von Petrzhak et al. (05) für die Dispersion der kinetischen Energie eines Primärfragmentes angegebene Wert $D_F = 12,8 \%$ (Zr-97) nähert sich den von Cohen et al. (08), Stein (09), sowie Milton und Frazer (10) kernphysikalisch bestimmten Werten, vergleiche Tabelle 1. Die Ergebnisse von Stein, sowie von Milton und Frazer wurden durch Untersuchungen an Fragmentpaaren erhalten.

2.3.3. Schlußfolgerungen

Die vorliegenden Daten weisen darauf hin, daß für die Untersuchung der Reichweiteverteilung von Spaltprodukten gasförmige Absorber festen Fängern vorzuziehen sind. Dadurch werden die zur Ermittlung von D_F notwendigen Korrekturen für S_A erniedrigt.

Nach den bisher durchgeführten Untersuchungen beträgt die vom Spaltprozess herrührende Dispersion der kinetischen Energie von primären Fragmenten ungefähr 11%. Dabei wurde vorausgesetzt, daß sowohl die Reichweite als auch deren Dispersion innerhalb einer isobaren Reihe konstant ist. Im folgenden Teil der Arbeit wird die Gültigkeit dieser Annahme untersucht.

3. REICHWEITE VON FRAGMENTEN

Mit Ausnahme der Reichweiten abgeschirmter Nuklide sind alle kernchemisch bestimmten Reichweiten kumulative Größen. Sie werden im folgenden, entsprechend der Terminologie für Spaltausbeuten als kumulative Reichweiten (R_c), beziehungsweise Isobarenreichweiten (R_{is}) bezeichnet. Analog dazu wird für die Reichweite eines Fragmentes der Begriff Fragmentreichweite (R_f) verwendet.

3.1. Bisher vorliegende Ergebnisse

Erste Hinweise darauf, daß die Fragmentreichweiten der Glieder einer isobaren Reihe verschieden sind, gaben die Untersuchungen von Niday (29), sowie von Brown und Oliver (01).

Niday ermittelte die Reichweiten mehrerer Spaltprodukte in Uran. Eine Darstellung der Isobarenreichweiten als Funktion der Nukleonenzahl des entsprechenden Spaltprodukts ergab einen Kurvenverlauf, der mit den Ergebnissen anderer Autoren gut übereinstimmt; vergleiche Brunton und Hanna (30), Milton und Frazer (10), Katcoff et al. (03), sowie Walton (31). Die Reichweiten der als Fragmente zu betrachtenden abgeschirmten Nuklide Rb-86 und Cs-136 zeigten hingegen stark negative Abweichungen von diesem Verlauf. Das Reichweitedefizit gegenüber der Isobarenreichweite betrug in beiden Fällen ungefähr 10%. Dieses Resultat wurde für Cs-136 durch die Ergebnisse von Brown und Oliver bestätigt.

Das experimentell gesicherte Reichweitedefizit abgeschirmter Nuklide ist möglicherweise nur eine charakteristische Folge der Abschirmung. Es liegt jedoch die Vermutung nahe, daß die Fragmentreichweiten allgemein von der Differenz $Z - Z_p$ abhängen⁺). Daher wurde versucht, Fragmentreichweiten innerhalb einer isobaren Reihe zu bestimmen.

3.2. Bestimmung der Reichweite von Fragmenten

Die kernchemische Bestimmung von Reichweiten kann zum Beispiel nach der dünnen Target - dünne Fänger-Methode erfolgen. Sie ergibt eine differentielle Reichweiteverteilungskurve, aus der die mittlere Reichweite zu entnehmen ist (vergleiche Abbildung 1). Genauere Werte für die mittlere Reichweite erhält man mit der dicken Target - dicker Fänger-Methode. Dabei wird ein dickes Target bestrahlt.

+) Mit Z wird die Ladungszahl eines Fragmentes, mit Z_p die wahrscheinlichste Ladungszahl der isobaren Reihe bezeichnet.

Anschließend ermittelt man die relativen Aktivitäten im Target und im Fänger. Die mittlere Reichweite R folgt aus der Beziehung (in mg Targetmaterial/cm²)

$$R = \frac{A^F}{A^F + A^T} \cdot 2 t \quad (16)$$

mit A^F : Aktivität im Fänger

A^T : Aktivität im Target

t : Flächengewicht des Targets in mg/cm²

Die Gleichung 16 gilt nur dann, wenn der Fänger beide Seiten der Targetfolie bedeckt. Außerdem müssen folgende Voraussetzungen erfüllt sein:

- a) Symmetrische Verteilung der Reichweite. Sie kann nach den Ergebnissen differentieller Reichweiteexperimente vorausgesetzt werden.
- b) Isotropie der Spaltfragmente. Sie ist bei Reaktorbestrahlungen durch eine fehlende Vorzugsrichtung der Neutronen gegeben.
- c) Homogener Teilchenfluß im Target. Er kann bei Targetdicken von 5 - 10 mg/cm² vorausgesetzt werden.
- d) Homogenität des Targets. Sie ist durch eine sorgfältige Herstellung zu erreichen.

Bestehen Target und Fänger aus verschiedenen Materialien, so ist die unterschiedliche Streuung der Spaltprodukte durch eine Korrektur zu berücksichtigen. Diese beträgt zum Beispiel nach Niday (29) für die Reichweiten in Uran +3% bis +5% (Aluminium gegenüber Blei als Fängermaterial).

Um einen Vergleich mit den Ergebnissen der im Abschnitt 2 beschriebenen differentiellen Reichweiteexperimente zu ermöglichen, war es wünschenswert, die Fragmentreichweiten in Aluminium zu untersuchen. Daher wurde eine Technik entwickelt, die als Vorteile in sich vereint:

1. Genauigkeit der dicken Target - dicker Fänger-Methode
2. Fortfall einer Korrektur für unterschiedliche Streuung
3. direkte Bestimmung der Reichweiten in Aluminium

Dabei wurden als dicke Targets Folien aus einer 0,01 bis 0,1%igen Legierung von Pu-239 in Aluminium verwendet. Die Abbremsseigenschaften einer derartigen Legierung entsprechen praktisch denen des Aluminiums. Die dicken Fänger bestanden aus Aluminiumfolien.

Eine Ermittlung von Fragmentreichweiten nach dieser Methode ist generell möglich, wenn folgende Forderungen erfüllt werden können:

1. Der Anteil des durch β^- -Zerfall gebildeten Nuklids an der Gesamtaktivität muß gegenüber der Fragmentaktivität klein sein. Das bedeutet, daß die Bestrahlungszeit, die Zeit vom Bestrahlungsende bis zur ersten Trennung und der Zeitbedarf der Trennung kürzer sind als die Halbwertszeit der Mutter des zu untersuchenden Nuklids.
2. Die Halbwertszeiten und Fragmentausbeuten der einzelnen Glieder der isobaren Reihe sollten mit hinreichender Genauigkeit bekannt sein. Nur dann ist eine Korrektur für die Nachbildung durch β^- -Zerfall durchführbar.

Zum Vergleich mit der für die Reihe 140 ermittelten Isobarenreichweite war es notwendig, die Fragmentreichweiten innerhalb einer möglichst benachbarten isobaren Reihe zu untersuchen. Daher wurde die Reihe 139 gewählt. Für sie sind die oben genannten Forderungen zu erfüllen. In Tabelle 8 sind einige charakteristische Daten dieser Reihe zusammengestellt.

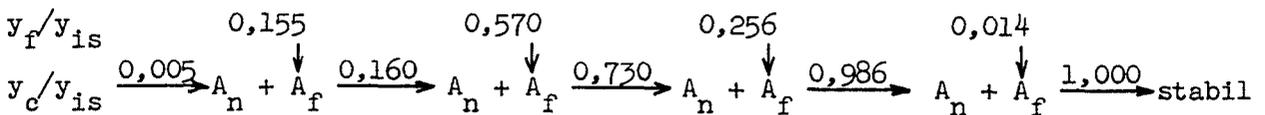
Tabelle 8

Spaltung von Pu-239 mit thermischen Neutronen

$$A = 139 \quad ; \quad Z_p = 54,1$$

Nuklid	:	J-139	$\xrightarrow{2,7 \text{ sec}}$	Xe-139	$\xrightarrow{41 \text{ sec}}$	Cs-139	$\xrightarrow{9,5 \text{ min}}$	Ba-139	$\xrightarrow{83 \text{ min}}$	La-139
Index i	:	1		2		3		4		5
$Z_i - Z_p$:	-1,1		-0,1		+0,9		+1,9		+2,9

Entstehung :



In der ersten Zeile sind die Nuklide mit ihren Halbwertszeiten aufgeführt. Die zweite Zeile enthält die später zur Kennzeichnung benutzten Indices i. Darunter folgen die Werte für die Differenz $Z_i - Z_p$. Z_p wurde nach Coryell et al. (32) und Wahl (33) berechnet. Die letzte Zeile gibt die Entstehung der Aktivitäten A_n und A_f für jedes Nuklid wieder. Dabei ist definiert

A_n : durch Nachbildung entstandene Aktivität

A_f : Fragmentaktivität

Für die kumulativ gebildete Aktivität A_c gilt:

$$A_c = A_n + A_f$$

Oberhalb der horizontalen Pfeile ist der Quotient y_c/y_{is} , über den senkrechten Pfeilen das Verhältnis y_f/y_{is} angegeben. Dabei bedeuten

- y_c : kumulative Spaltausbeute
- y_f : Fragmentausbeute
- y_{is} : Isobarenausbeute

y_c und y_f wurden nach Wahl (33) mit $c = 0,95$ berechnet.

Selbst bei extrem schnellem Arbeiten war eine Nachbildung durch β^- -Zerfall nicht völlig zu verhindern. Daher lagen nach der ersten radiochemischen Trennung folgende Aktivitäten vor

A_f^T und A_f^F : Fragmentaktivitäten im Target und Fänger

A_n^T und A_n^F : durch Nachbildung entstandene Aktivitäten im Target und Fänger

Aus diesen Werten konnten die Fragmentreichweiten und kumulativen Reichweiten nicht direkt berechnet werden. Sie ergaben sich jedoch als relative Größen nach Gleichung 16 aus den Beziehungen

$$\frac{R_f}{R_c} = \frac{A_f^F (A_n^F + A_f^F + A_n^T + A_f^T)}{(A_n^F + A_f^F) (A_f^F + A_f^T)} \quad (17)$$

$$\frac{R_n}{R_c} = \frac{A_n^F (A_n^F + A_f^F + A_n^T + A_f^T)}{(A_n^F + A_f^F) (A_n^F + A_n^T)} \quad (18)$$

Der Vorteil dieser Berechnung liegt darin, daß die fehlerbehaftete Größe t (Targetdicke) eliminiert wird.

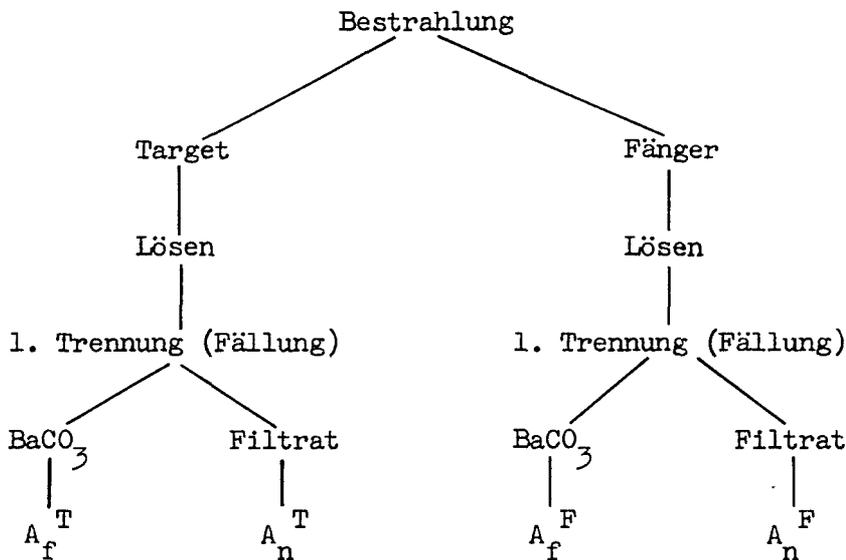
Annähernd gilt für Ba-139 : $R_c = R_{is}$. Diese Reichweite wurde als Bezugswert der Fragmentreichweiten in einer Reihe von Versuchen gesondert ermittelt. Gleichzeitig konnte durch eine entsprechende Auswertung der Abfallkurven die kumulative Reichweite des Ba-140 erhalten werden. Diese ist für einen Vergleich mit den Ergebnissen der differentiellen Reichweiteexperimente von Interesse. Die gewichteten Mittel aus zehn Versuchen ergaben

- für Ba-139 : $R_c = (2,96 \pm 0,03) \text{ mg Al/cm}^2$
- für Ba-140 : $R_c = (2,94 \pm 0,04) \text{ mg Al/cm}^2$

Die Targetdicke wurde durch Wägung und Ausmessen der Fläche bestimmt. Wegen der relativ geringen Stärke der Targetfolien (5 bis 8 mg/cm^2 bei einer Gesamtfläche von ca. 9 cm^2) war der sogenannte Kanteneffekt^{+) zu vernachlässigen.}

3.2.1. Fragmentreichweite des Ba-139

Die Bestimmung der Fragmentreichweite des Ba-139 erfolgte durch insgesamt 9 Experimente. Die Bestrahlungszeit τ betrug jeweils 10 sec. Nach der Bestrahlung wurden Target- und Fängerfolie voneinander getrennt und gleichzeitig in Anwesenheit bekannter Mengen Cs- und Ba-Träger aufgelöst. Aus den dabei anfallenden Lösungen wurde Ba-139 als Karbonat abgetrennt. Die Zeit t_1 vom Bestrahlungsende bis zu dieser ersten Trennung lag bei 40 sec. Nach einer Wartezeit t_2 von ungefähr 50 min schloß sich für die vier Fraktionen ein radiochemischer Ba-Trennungsgang an. Die Aufteilung in die einzelnen Aktivitäten gibt folgendes Schema wieder:



Bei der Auswertung war durch Korrekturen zu berücksichtigen:

- Nachbildung von Ba-139 während der Zeiten τ , t_1 und t_2 . Die Korrektur erfolgte durch eine Berechnung nach der Bateman-Gleichung für die ersten vier Glieder der isobaren Reihe unter Verwendung der auf Seite 38 angegebenen Werte der Halbwertszeiten und Spaltausbeuten.
- Entweichen von Xe-139 beim Lösen der Folien. Der durch Verflüchtigung verlorene Anteil x der zum Zeitpunkt der ersten Trennung vorhandenen Xe-139-Aktivität wurde in zwei zusätzlichen Experimenten ermittelt. Eine Auswertung mit Hilfe der Bateman-Gleichung ergab den Wert $x = 0,38 \pm 0,05$.

^{+) Verlust} von Rückstoßkernen aus den seitlichen Kanten des Targets.

- c) Verschleppung von Cs-139, sowie eventuell J-137 und Xe-139 aus dem Filtrat in den Karbonat-Niederschlag der ersten Trennung durch Mitfällung. Sie konnte durch Zugabe einer bekannten Cs-137-Aktivität beim Lösen der Folien und eine später erfolgende Cs-137-Bestimmung in den BaCO₃-Fraktionen ermittelt werden.
- d) Verschleppung von Ba-139 in das Filtrat durch unvollständige Ausfällung bei der ersten Trennung. Die Ausbeute dieser Fällung wurde titrimetrisch bestimmt.

Die nach den Gleichungen 17 und 18 berechneten Werte für R_f/R_c beziehungsweise R_n/R_c sind in Tabelle 9 zusammengestellt.

Tabelle 9

Versuch	$\frac{R_f}{R_c}$	$\frac{R_n}{R_c}$	p
1	0,915	1,009	0,9
2	0,978	1,002	0,8
3	0,858	1,014	0,7
4	0,936	1,009	0,7
5	0,917	1,010	1,4
6	0,896	1,015	1,2
7	0,947	1,006	0,9
8	0,963	1,004	1,0
9	0,985	1,002	0,9

Die Größe p bedeutet das Gewicht der einzelnen Werte. Es ergibt sich aus den experimentellen Einzelfehlern der relativen, korrigierten Aktivitäten A_n und A_f im Fänger und Target.

Die gewichteten Mittel betragen:

$$\frac{R_f}{R_c} = 0,93 \pm 0,01 ; \quad \frac{R_n}{R_c} = 1,008 \pm 0,002$$

Aus den Experimenten war ferner die kumulative Reichweite des Ba-139 nach Gleichung 16 mit der Gleichsetzung

$$A^F = A_n^F + A_f^F \quad \text{und} \quad A^T = A_n^T + A_f^T$$

zu ermitteln.

Das gewichtete Mittel ergab:

$$R_c = (2,93 \pm 0,05) \text{ mg Al/cm}^2$$

Für die später folgenden Umrechnungen wurde jedoch der genauere Wert $R_c = (2,96 \pm 0,03) \text{ mg Al/cm}^2$ verwendet (vergleiche Seite 39).

Um den Einfluß einiger in die Rechnung eingehender Unsicherheiten auf die Ergebnisse zu untersuchen, erfolgte eine Berechnung von R_f/R_c und R_n/R_c mit verschiedenen Kombinationen folgender Varianten:

1. Unsicherheit der berechneten Spaltausbeute.

$$\text{Variation : } Z_p = 54,1 \pm 0,5$$

2. Unsicherheit des experimentell bestimmten Xe-139-Verlustes x.

$$\text{Variation : } x = 0 \text{ bis } x = 1$$

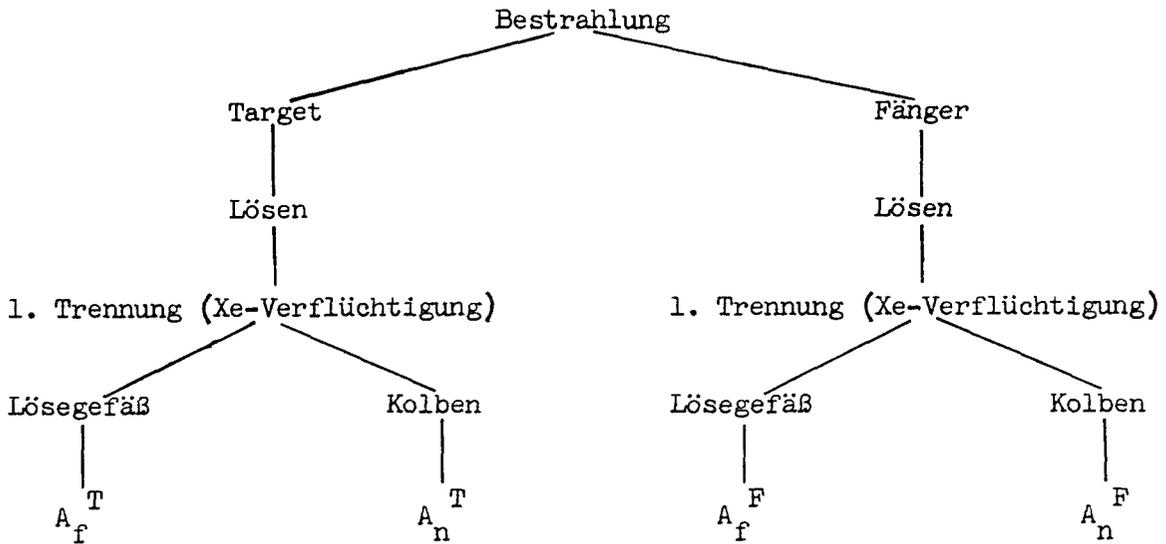
3. Unsicherheit über die Mitfällung bei der ersten Trennung.

$$\text{Variation : } Z = 1, \text{ alle Glieder der isobaren Reihe werden mitgefällt.} \\ Z = \text{variabel, nur Cs-139 wird mitgefällt. (Siehe Anhang)}$$

Das Ergebnis dieser Berechnung zeigte, daß selbst bei der ungünstigsten Kombination die angegebenen Fehlergrenzen nicht wesentlich überschritten werden.

3.2.2. Fragmentreichweite des Cs-139

Die Bestimmung der Fragmentreichweite des Cs-139 erfolgte durch acht Experimente mit einer Bestrahlungszeit τ von jeweils 2 sec. Nach dem Bestrahlungsende wurden die Target- und die Trägerfolie gleichzeitig in zwei Apparaturen gelöst. Diese bestanden aus einem Lösegefäß, aus dem das Xe mit Hilfe eines Treibgases in einen vorher evakuierten Kolben abgetrieben werden konnte. Die Zeit t_1 vom Bestrahlungsende bis zur Xe-Abtrennung betrug ungefähr 30 sec. Anschließend wurden die Xe-139-Aktivitäten nach einer Wartezeit t_2 von 60 min über die nachgebildeten Ba-139-Aktivitäten ermittelt. Die Aufteilung in die einzelnen Aktivitäten zeigt folgendes Schema:



Bei der Auswertung wurde durch Korrekturen berücksichtigt:

- a) Nachbildung von Cs-139 während der Zeiten \tilde{t} , t_1 und t_2 , sowie die Ba-139-Fragmentaktivität im Lösegefäß. Die Korrektur erfolgte wie bei der Bestimmung der Fragmentreichweite des Ba-139 durch eine Berechnung nach der Bateman-Gleichung.
- b) Unvollständige Austreibung des Xe-139. Die Ausbeute x dieser Abtrennung wurde in zwei zusätzlichen Experimenten gesondert ermittelt. Eine Auswertung mit Hilfe der Bateman-Gleichung ergab den Wert $x = 0,98 \pm 0,05$.
- c) Verschleppung von Aktivität aus dem Lösegefäß in den Kolben durch teilweises Verspritzen oder Versprühen der Lösung (Aerosolbildung). Sie konnte durch Zugabe einer bekannten Cs-137-Aktivität in das Lösegefäß "markiert" werden.
- d) Volumenanteil v des Kolbens am Gesamtvolumen der Apparatur. Er ergab sich aus den Abmessungen zu $v = 0,93$.

Die nach den Gleichungen 17 und 18 für R_f/R_c und R_n/R_c berechneten Werte enthält die Tabelle 10.

Tabelle 10

Versuch	$\frac{R_f}{R_c}$	$\frac{R_n}{R_c}$	p
1	1,194	0,931	0,9
2	0,850	1,093	1,0
3	0,780	1,070	0,8
4	0,878	1,047	0,7
5	0,930	1,019	0,7
6	0,943	1,032	0,8
7	0,785	1,083	0,8
8	1,255	0,918	0,9

Die gewichteten Mittel betragen:

$$\frac{R_f}{R_c} = 0,96 \pm 0,06 \quad ; \quad \frac{R_n}{R_c} = 1,02 \pm 0,02$$

Aus einer Berechnung nach Gleichung 16 resultiert für die kumulative Reichweite des Cs-139 als gewichtetes Mittel (vergleiche Seite 41):

$$R_c = (2,96 \pm 0,06) \text{ mg Al/cm}^2$$

Die Fehler der Relativwerte R_f/R_c und R_n/R_c sind erheblich größer als die der entsprechenden Werte für Ba-139. Als Ursache dafür ist die kleinere Halbwertszeit des Mutternuklids (Xe-139) gegenüber den Zeiten τ und t_1 anzusehen. Dadurch ergeben sich höhere Beträge für die Korrekturgrößen. Um systematische Fehler auszuschalten, die durch unterschiedliche Eigenschaften der Apparaturen entstehen können, wurde die Fänger- und die Targetfolie von Versuch zu Versuch abwechselnd in einer anderen der beiden Apparaturen gelöst. Ein systematischer Gang der Ergebnisse mit diesem Wechsel war nicht festzustellen. Ferner wurden bei der Auswertung die Größen Z_p und x variiert (vergleiche Seite 42). Auch bei der ungünstigsten Kombination im Bereich $Z_p = 54,1 \pm 0,5$ und $x = 0,95 \pm 0,05$ lagen die Abweichungen innerhalb der Fehlergrenze.

3.3. Diskussion der Ergebnisse

In der Tabelle 11 sind die auf die Isobarenreichweite bezogenen relativen Fragmentreichweiten und kumulativen Reichweiten, sowie deren Absolutwerte zusammengestellt.

Tabelle 11

Reichweite	Ba-139	Cs-139	Xe-139
$\frac{R_f}{R_{is}}$	$0,93 \pm 0,01$	$0,97 \pm 0,06$	-
$\frac{R_c}{R_{is}}$	$1,00^+)$	$1,01 \pm 0,01$	$1,03 \pm 0,03$
R_f (mg Al/cm ²)	$2,75 \pm 0,06$	$2,86 \pm 0,20$	-
R_c (mg Al/cm ²)	$2,96 \pm 0,03$	$2,98 \pm 0,04$	$3,05 \pm 0,09$

Die relativen Reichweiten wurden folgendermaßen aus den Ergebnissen des Abschnitts 3.2. berechnet:

$$\frac{R_f(Cs)}{R_{is}} = \frac{R_f(Cs)}{R_c(Cs)} \cdot \frac{R_c(Cs)}{R_{is}} \quad ; \quad \frac{R_c(Xe)}{R_{is}} = \frac{R_c(Xe)}{R_c(Cs)} \cdot \frac{R_c(Cs)}{R_{is}}$$

Mit der innerhalb der Fehlergrenzen gültigen Vereinfachung $R_c(Cs) = R_n(Ba)$ und $R_c(Xe) = R_n(Cs)$, sowie $R_c(Ba) = R_{is}$ folgt:

$$\frac{R_f(Ba)}{R_{is}} = \frac{R_f}{R_c}(Ba) \quad ; \quad \frac{R_c(Ba)}{R_{is}} = \frac{R_c}{R_c}(Ba)$$

$$\frac{R_f(Cs)}{R_{is}} = \frac{R_f}{R_c}(Cs) \cdot \frac{R_n}{R_c}(Ba) \quad ; \quad \frac{R_c(Cs)}{R_{is}} = \frac{R_n}{R_c}(Ba)$$

$$\frac{R_c(Xe)}{R_{is}} = \frac{R_n}{R_c}(Cs) \cdot \frac{R_n}{R_c}(Ba)$$

Die absoluten Werte der Reichweiten erhält man aus den relativen durch Multiplikation mit $R_{is} = 2,96 \text{ mg Al/cm}^2$.

⁺) Dieser Wert ergibt sich aus der Definition $R_c(Ba) = R_{is}$

3.3.1. Abhängigkeit der Fragmentreichweiten von $Z - Z_p$

In der Abbildung 10 sind die Werte der relativen Fragmentreichweiten und kumulativen Reichweiten verschiedener Glieder i der isobaren Reihe 139 gegen die entsprechenden Differenzen $Z_i - Z_p$ aufgetragen. Die Abbildung enthält außerdem die relativen Fragmentreichweiten der abgeschirmten Nuklide Cs-136 und Rb-86. Sie wurden aus den Daten von Niday (29), sowie von Brown und Oliver (01) berechnet. Die dargestellten Fehlergrenzen ergeben sich aus den für die absoluten Fragmentreichweiten angegebenen Fehlern und der Ungenauigkeit der durch Extrapolation ermittelten Isobarenreichweiten.

Wie die Darstellung zeigt, kann die Funktion $\frac{R_f(i)}{R_{is}} = f(Z_i - Z_p)$ für isobare

Reihen der Nukleonenzahlen 136 - 139 durch eine Geradengleichung wiedergegeben werden:

$$\frac{R_f(i)}{R_{is}} = 1,0 + b(Z_i - Z_p) \quad (19)$$

Für die Neigung der Geraden gilt $b = -0,037$. Die Lage des Wertes von Rb-86 deutet darauf hin, daß die Beziehung auch näherungsweise für eine isobare Reihe im Bereich niedrigerer Nukleonenzahlen gültig ist. Dabei wird die Geradenneigung möglicherweise kleiner.

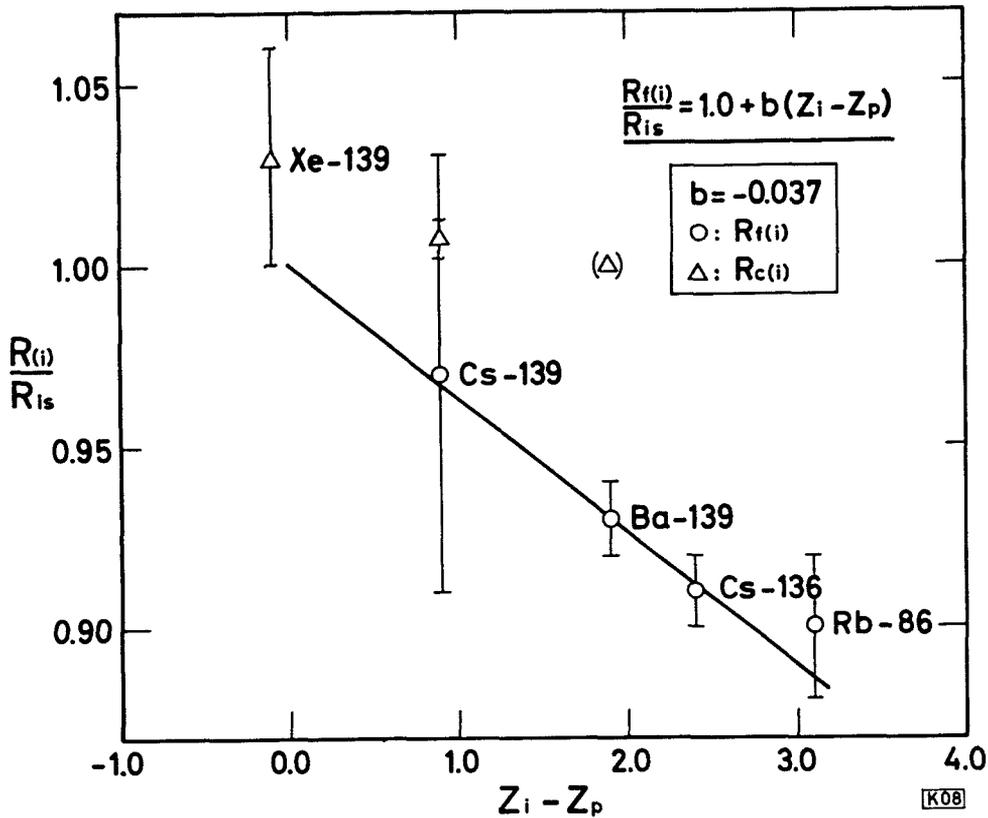


Abb. 10 Relative Fragmentreichweite $R_f(i)/R_{is}$ und kumulative Reichweite $R_c(i)/R_{is}$ des Fragments- bzw. Spaltprodukts i als Funktion von $Z_i - Z_p$. Werte für Cs-136 und Rb-86 nach Niday (29), sowie Brown und Oliver (01).

3.3.2. Einfluß der Fragmentreichweiten auf die Reichweiteverteilung isobarer Reihen.

Bisher wurde bei der Ermittlung der vom Spaltprozeß herrührenden Energiedispersion primärer Fragmente vorausgesetzt, daß die Reichweite und deren Dispersion innerhalb einer isobaren Reihe gleich ist. Nach den Ergebnissen des Abschnittes 3.3.1. sind jedoch die Reichweiten der isobaren Fragmente voneinander verschieden. Demnach besteht eine isobare Reichweiteverteilung aus den Reichweiteverteilungen einzelner Fragmente, deren Mittelpunkte nicht mit der mittleren Isobarenreichweite zusammenfallen.

Nach den Ergebnissen von Brown und Oliver (01) für Cs-136 kann die Form einer Fragment-Reichweiteverteilung in guter Näherung durch eine Gauß-Verteilung wiedergegeben werden. Das Verhältnis der Verteilungsbreiten innerhalb einer isobaren Reihe ist jedoch unbekannt. Um den Einfluß abschätzen zu können, den die unterschiedlichen Fragmentreichweiten auf die isobare Reichweiteverteilung ausüben,

wurde angenommen, daß die Standardabweichungen aller Fragment-Reichweiteverteilungen für eine isobare Reihe gleich sind.

Die Normalverteilung der relativen Reichweite R_f/R_{is} eines Fragments i um seine mittlere relative Reichweite $R_{f(i)}/R_{is}$ ist durch folgende Funktion zu beschreiben:

$$I \left(\frac{R_f}{R_{is}} \right) = \frac{F_{f(i)}}{\sigma_f \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\left(\frac{R_{f(i)}}{R_{is}} - \frac{R_f}{R_{is}} \right)^2}{2 \sigma_f^2}} \quad (20)$$

Dabei bedeutet σ_f die auf die Isobarenreichweite normierte Standardabweichung der Fragment-Reichweiteverteilung. $F_{f(i)}$ ist der relative Häufigkeitsanteil des Fragments i an der gesamten Isobarenhäufigkeit. Er ergibt sich aus der Ladungsverteilungsfunktion

$$F_{f(i)} = \frac{y_{f(i)}}{y_{is}} = \frac{1}{\sigma_z \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(Z_i - Z_p)^2}{2 \sigma_z^2}} \quad (21)$$

σ_z ist die Standardabweichung der Ladungsverteilung. Durch Einsetzen der entsprechenden Größen aus Gleichung 19 und 21 in die Beziehung 20 folgt:

$$I \left(\frac{R_f}{R_{is}} \right) = \frac{1}{\sigma_f \sigma_z \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\sigma_z^2 \left[1 - \frac{R_f}{R_{is}} + b (Z_i - Z_p) \right]^2 + \sigma_f^2 (Z_i - Z_p)^2}{2 \sigma_f^2 \sigma_z^2}} \quad (22)$$

Setzt man das Maximum der isobaren Reichweiteverteilung gleich dem der Summenkurve aus allen Fragment-Reichweiteverteilungen, so ergibt sich mit $R_f/R_{is} = 1$ und nach Gleichung 22 der Ausdruck:

$$\frac{1}{\sigma_{is} \sqrt{2\pi}} = \frac{1}{\sigma_f \sigma_z \sqrt{2\pi}} \sum e^{-\frac{b^2 (Z_i - Z_p)^2}{2 \sigma_f^2} - \frac{(Z_i - Z_p)^2}{2 \sigma_z^2}}$$

Durch Umformung folgt:

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_{is}} = \frac{\sqrt{2\pi}}{2\pi \sigma_z} \sum e^{-0,5 \left(\frac{b^2}{\sigma_f^2} + \frac{1}{\sigma_z^2} \right) (Z_i - Z_p)^2} \quad (23)$$

Die Standardabweichung σ_{is} der isobaren Reichweiteverteilung ist wie σ_f auf die Isobarenreichweite normiert. Den Verlauf dieser Funktion zeigt die Abbildung 11. Die sich für verschiedene experimentell ermittelte Reichweitedispersionen S_{exp} ergebenden Werte des Quotienten σ_f/σ_{is} sind im Bereich von $S_{exp} = 8 - 22\%$

der Darstellung zu entnehmen.

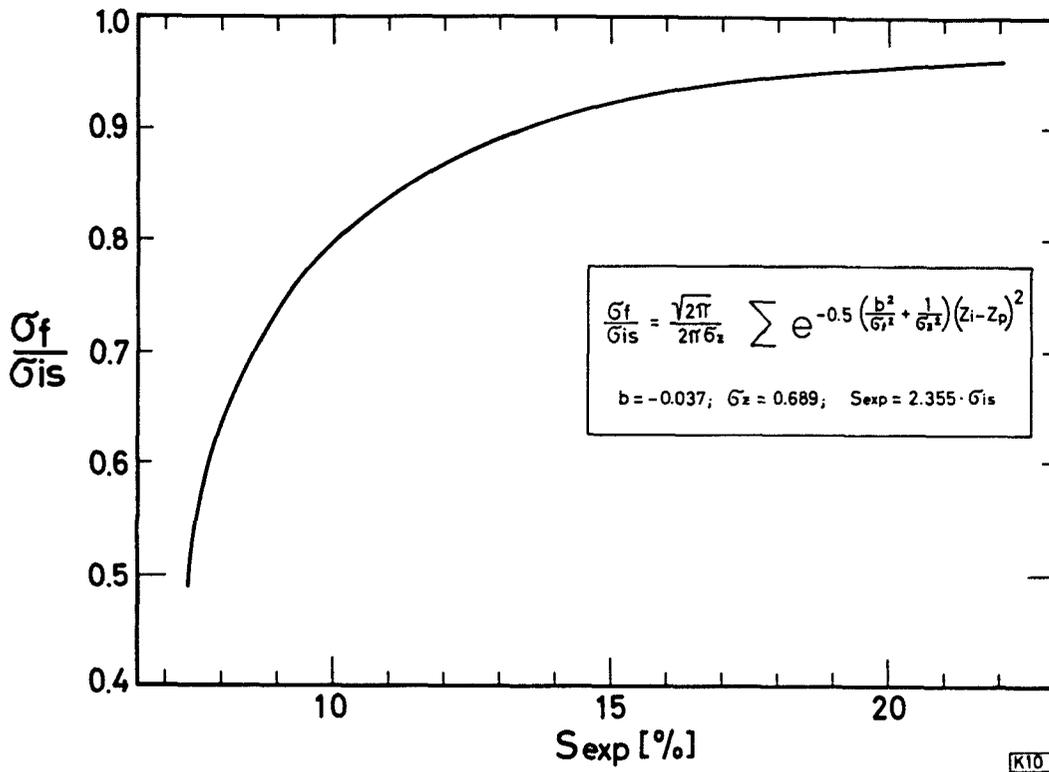


Abb. 11 σ_f/σ_{is} als Funktion von S_{exp}

Ein Vergleich mit den Ergebnissen von Brown und Oliver (01) zeigt für Cs-136 ($S_{exp} = 17,7\%$) eine gute Übereinstimmung. Aus der Gleichung 23 und der Abbildung 11 resultiert für $S_{exp} = 17,7\%$ der Wert $\sigma_f/\sigma_{is} = 0,945$. Der aus den experimentellen Daten von Brown und Oliver zu berechnende Quotient beträgt $\sigma_f/\sigma_{is} = 0,943$.

Durch die Superposition der Fragment-Reichweiteverteilungen wird die isobare Reichweiteverteilung verbreitert. Diese Verbreiterung hängt ab von der Breite der experimentellen Verteilung und ist dem Quotienten σ_f/σ_{is} umgekehrt proportional. Als Beispiel einer derartigen Superposition sind in der Abbildung 12 die Fragment-Reichweiteverteilungskurven für die isobare Reihe 140 bei der Spaltung von Pu-239 mit thermischen Neutronen dargestellt ($Z_p = 54,6$). Ihr Verlauf wurde nach Gleichung 22 berechnet. σ_f ergab sich aus der Beziehung 23 mit $S_{exp} = 20\%$.

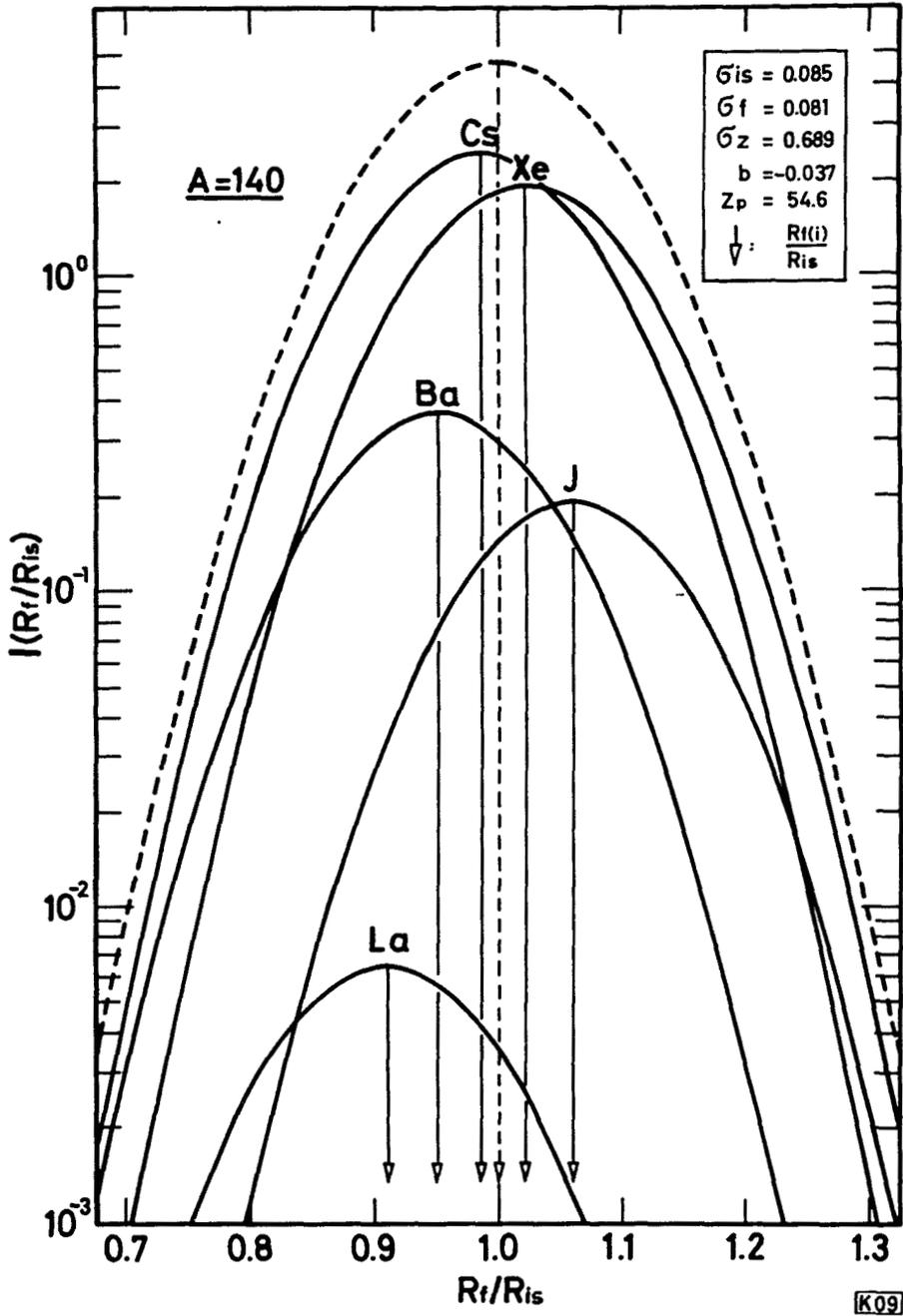


Abb. 12 Reichweiteverteilung innerhalb der isobaren Reihe 140 bei der Spaltung von Pu-239 mit thermischen Neutronen.

- : Verteilung der Fragmentreichweite
- : Verteilung der Isobarenreichweite als Summenkurve

Bei der Berechnung der Energiedispersion D_F von Primärfragmenten ist die Verbreiterung der isobaren Reichweiteverteilung zu berücksichtigen. Die Korrekturgleichung 9 (siehe Seite 28) muß daher folgendermaßen erweitert werden:

$$S_{\text{korr}}^2 = \left(\frac{\sigma_f}{\sigma_{is}} S_{\text{exp}} - S_T \right)^2 - S_G^2 \quad (9a)$$

Berechnet man mit dieser Gleichung D_F aus den experimentellen Daten von Petrzhak et al. (05) mit Hilfe der auf Seite 29 beschriebenen graphischen Analyse, so erhält man einen Wert von ungefähr 5% (gegenüber 11,2% ohne Berücksichtigung der Verbreiterung). Zu ähnlichen Resultaten dürfte die Auswertung der von Katcoff et al. (03) ermittelten Reichweitedispersionen führen. Diese stimmen mit den Ergebnissen von Petrzhak et al. (05) recht gut überein (vergleiche Abbildung 9).

Unter der auf Seite 48 erwähnten Voraussetzung ($\sigma_f = \text{konst.}$) ist die bisher ermittelte, vom Spaltprozeß herrührende Dispersion der kinetischen Energie primärer Fragmente wesentlich zu groß. Die tatsächliche Energiedispersion ist um einen Faktor von ungefähr 0,5 kleiner. Deshalb sollten die von verschiedenen Autoren aus der Größe der Energiedispersion abgeleiteten Folgerungen überprüft werden. So scheint zum Beispiel das Argument von Cohen et al. (08) gegen die von Fong (34) entwickelte statistische Theorie der Spaltung nicht mehr gerechtfertigt. Fong sagte aufgrund dieser Theorie für die Dispersion der kinetischen Energie von Primärfragmenten einen Betrag von ungefähr 6% voraus. Cohen et al. hingegen ermittelten den Wert $(11,4 \pm 0,8)\%$. Sie bezweifelten wegen der starken Abweichung des Fong'schen Wertes die Gültigkeit der statistischen Theorie.

4. ZUSAMMENFASSUNG

1. Es wurde die Reichweiteverteilung von Ba-140 und Sb-127 in Aluminium mit Hilfe der Stripping-Methode untersucht. Die mittleren Reichweiten betragen für:

$$\text{Ba-140} : (2,95 \pm 0,10) \text{ mg Al/cm}^2$$

$$\text{Sb-127} : (3,6 \pm 0,2) \text{ mg Al/cm}^2$$

Die relativen Dispersionen der Reichweiteverteilung betragen für:

$$\text{Ba-140} : (20,3 \pm 1,0)\%$$

$$\text{Sb-127} : (23,1 \pm 1,7)\%$$

Die Breite der Verteilungen ist größer als die mit gasförmigen Absorbern ermittelte Dispersion. Damit wird die Feststellung von Gilat und Alexander (28) bestätigt, daß bei der Untersuchung von Reichweiteverteilungen gasförmige Fänger festen Absorbern vorzuziehen sind.

2. Nach den Resultaten von Brown und Oliver (01), sowie nach den Ergebnissen dieser Arbeit tritt bei differentiellen Reichweiteexperimenten in der experimentellen Verteilung ein niederenergetischer Untergrund auf. Er kann durch eine Streuung der Spaltprodukte an der Kollimatorwand und in der Materie zwischen Targetunterlage und Fänger erklärt werden. Die Anteile beider Effekte an der Gesamtverteilung hängen vom Aufbau des Kollimators ab.
3. Eine Untersuchung der Stripping-Methode zeigte, daß von Aluminiumfängern wesentlich elektropositivere Elemente nur teilweise abgelöst werden. Unter der Annahme einer konstanten Verschleppung wurden folgende Verschleppungsfaktoren k ermittelt

$$\text{für Sb} : k = 0,80 \pm 0,03$$

$$\text{für Ag} : k = 0,98 \pm 0,01$$

4. Ein kritischer Vergleich der vorliegenden Daten ergab für die vom Spaltprozeß verursachte Energiedispersion primärer Fragmente einen Wert von ungefähr 11%. Bei der Berechnung wurde von sämtlichen Autoren vorausgesetzt, daß sowohl die Reichweiten als auch deren Dispersionen aller Fragmente einer isobaren Reihe gleich sind.
5. Es wurde eine neue Technik entwickelt, die es mit einer dicken Target - dicker Fänger-Anordnung ermöglicht, Reichweiten direkt in Aluminium zu ermitteln. Das Targetmaterial besteht dabei aus einer Legierung von zum Beispiel Pu-239 in Aluminium. Eine Korrektur für unterschiedliche Streuung der Spaltprodukte in Target und Fänger entfällt.
6. Durch neuentwickelte schnelle Trennmethode für Ba-139 und Xe-139 gelang es, diese Nuklide aus den Fänger - und Targetfolien in 30 bzw. 20 Sekunden abzutrennen.

7. Mit Hilfe der unter 5. und 6. genannten Methoden wurde die Fragmentreichweite von Ba-139 und Cs-139, sowie die kumulative Reichweite von Ba-139 in Aluminium untersucht. Diese Reichweiten betragen (in mg Al/cm²)

Kumulative Reichweite Ba-139 : $2,96 \pm 0,03$

Fragmentreichweite Ba-139 : $2,75 \pm 0,06$

Fragmentreichweite Cs-139 : $2,86 \pm 0,20$

8. Nach diesen experimentellen Ergebnissen ist die Reichweite von Fragmenten innerhalb einer isobaren Reihe nicht gleich. Eine Auswertung ergab, daß die relativen, auf die Isobarenreichweite bezogenen Reichweiten R_f/R_{is} schwerer Fragmente annähernd linear von der Differenz $Z - Z_p$ abhängen:

$$\frac{R_f}{R_{is}} = 1,0 - 0,037 (Z - Z_p)$$

9. Unter Berücksichtigung dieser Funktion und mit der Annahme, ~~daß~~ die Reichweitendispersion für alle Glieder einer isobaren Reihe konstant ist, wurde aus den Ergebnissen anderer Autoren die vom Spaltprozeß herrührende Dispersion der kinetischen Energie primärer Fragmente berechnet. Danach sind die früher für diese Dispersion ermittelten Werte um einen Faktor von ungefähr 2 zu groß. Deshalb ist eine Überprüfung der bisher aus dieser Größe abgeleiteten Folgerungen notwendig. ~~Unter~~ anderem verliert ein wesentliches Argument gegen die von Fong (34) aufgestellte statistische Theorie der Spaltung an Gewicht.

5. EXPERIMENTELLER TEIL

5.1. Stripping-Methode

Das Targetmaterial bestand aus einer 0,1 %igen Legierung von natürlichem Uran in Aluminium. Um diese zu erhalten, wurde zunächst eine 3 %ige Legierung hergestellt. 20 g 99,99% Aluminium wurden in einem Tiegel aus gesintertem Aluminiumoxyd unter Stickstoff mit einem Flußmittel (63 Teile KCl und 37 Teile KF) geschmolzen. Unter Rühren erfolgte bei 800 °C die Zugabe von 0,6 g Uran-Spänen. Nach 15 min wurde die Schmelze in eine Asbest-Form gegossen. 1 g dieser Legierung wurde anschließend mit 29 g Aluminium unter den oben genannten Bedingungen zusammengeschmolzen. Aus der nunmehr 0,1 %igen Legierung erfolgte die Herstellung der Target-Bleche durch Auswalzen auf 1 mm Stärke. Die Blechstreifen wurden auf Stücke von 20 x 40 mm zugeschnitten und nach einer Vorschrift von Tegart (35) elektropoliert.

Die Targetanordnung bestand aus drei in einem Aluminiumrahmen aufeinandergepressten Targetblechen. Ihre Seitenkanten waren durch Streifen desselben Materials abgedeckt.

Die Bestrahlung erfolgte über eine Zeit von 5 Tagen im Reaktor EL 2 des Forschungszentrums Saclay.

Nach der Bestrahlung wurden vom mittleren Targetblech 10 Schichten von je ca. 75 µg Al/cm² mit Hilfe der Stripping-Technik abgelöst. Nähere Einzelheiten ergeben sich aus folgender Aufstellung:

- Elektrolysegefäß : 450 ml Becherglas
- Elektrolyt : 2 %ige Lösung von Ammoniumcitrat in bidest. Wasser, mit Ammoniak auf p_H 5 - 6 eingestellt; thermostatisiert auf 18 °C.
- Kathode : an der Wandung des Elektrolysegefäßes anliegende Runderlektrode aus 0,5 mm starkem Aluminiumblech.
- Stromzuführung an das Targetblech : Aluminiumdraht, 1 mm Ø, befestigt an einem Loch im Targetblech.
- Stripping-Lösung : 50 g H₃PO₄ + 30 g CrO₃/1 H₂O.
Trägergehalt bei einem Experiment je 0,3 µg Ba, Sb und Ag pro ml, bei einem anderen je 0,4 mg Ba, Sb und Ag pro ml. Für jede Stripping-Fraktion eingesetztes Volumen: 25,0 ml, erhitzt auf ca. 100 °C.
- Trägermenge : bei Beginn der radiochemischen Trennung für jedes der beiden Experimente 20 mg Ba, 20 mg Ag, 10 mg Sb.

Für jede Stripping-Fraktion wurde mit dem Targetblech folgender Zyklus dreimal wiederholt:

- 5 min Anodisieren bei einer Spannung von 100 Volt ($\sim 25 \mu\text{g Al/cm}^2$)
- 5 min Erhitzen in der Stripping-Lösung
- 5 min Wässern in destilliertem Wasser

Daran schloß sich nach 5 min Trocknen die Ermittlung des Gewichtsverlustes durch Wägung an.

Vor Beginn der radiochemischen Trennungsgänge für Ba, Sb und Ag war eine Gruppentrennung durchzuführen. Sie erfolgte nach der Vorschrift:

a) Stripping-Lösung:

Lösung erhitzen und 3 ml 6n HCl zugeben. Nach Koagulieren des AgCl-Niederschlags durch Membranfilter filtrieren.

Filtrat erhitzen und mit einer Spatelspitze Hydraziniumdichlorid versetzen. 1 ml HCl konz. zugeben und 10 min lang H_2S einleiten. Zentrifugieren und durch Membranfilter filtrieren.

Filtrat mit NaOH konz. alkalisch machen, mit 1 ml gesättigter Na_2CO_3 -Lösung versetzen und erhitzen. Niederschlag abzentrifugieren und zweimal mit karbonathaltigem H_2O waschen. Anschließend in 2 ml HCl konz. unter Erwärmen lösen. Nach Abkühlen im Eisbad mit 15 ml HCl-Äther-Mischung (5:1) $\text{BaCl}_2 \cdot 2 \text{H}_2\text{O}$ fällen. Niederschlag abzentrifugieren und in H_2O lösen. Aus ammoniakalischer Lösung BaCO_3 mit 1 ml gesättigter Na_2CO_3 -Lösung fällen. Niederschlag abzentrifugieren und in 1 ml 6n HCl lösen.

b) Target-Blech:

Ungefähr 100 mg des Target-Blechtes nach Zugabe von je 10 μg Ba-, Sb- und Ag-Träger in 2 ml HCl konz. unter Zusatz einiger Tropfen Perhydrol lösen. Anschließend nacheinander 10 mg Sb-, 20 mg Ba- und 20 mg Ag-Träger zufügen, auf 20 ml verdünnen und erhitzen. Ag, Sb und Ba wie unter a) beschrieben abtrennen (ohne Zusatz von Hydraziniumdichlorid).

5.2. Reichweiteverteilung der isobaren Reihen 140 und 127

5.2.1. Experiment 1

Zur Herstellung des Targets wurde Plutonium auf einem elektropolierten Aluminium-Träger elektrolytisch nach folgender Vorschrift abgeschieden. Die exponierte Fläche betrug dabei 6 x 20 mm.

1 ml Pu-239-Lösung ($\sim 0,53$ mg Pu-239) unter Zusatz von 1 ml 0,5n KBrO_3 -Lösung zur Trockene eindampfen. Mit 3 - 4 Tropfen HNO_3 konz. abrauchen. Rückstand mit 1,5 ml 0,4m Ammonoxalatlösung aufnehmen, 1 Tropfen 0,05% Phenolrot zusetzen und in die Elektrolysezelle überführen. Kathode: Aluminiumträger. Anode: Rührscheibe aus 0,5 mm starkem Platinblech, 10 mm \varnothing . Elektrodenabstand: 12 mm. Unter Rühren mit ca. 100 U/min 0,5 h bei 5 Volt und 50 - 60 mA elektrolysieren. Bei Indikatorumschlag mit 1 Tropfen 1n HNO_3 ansäuern. Kathode mit Wasser und Aceton abspülen und kurz über einem Heizofen erwärmen.

Nach der elektrolytischen Abscheidung wurde das Flächengewicht des niedergeschlagenen Plutoniums durch α -Zählung ermittelt. Anschließend erfolgte die Bedampfung des Targets mit Aluminium in einer kommerziellen Bedampfungsanlage. Das Flächengewicht der aufgedampften Schicht ergab sich durch eine Bestimmung der Gewichts-differenz.

Die Targetanordnung ist in der Abbildung 13 wiedergegeben. Alle dargestellten Einzelteile bestanden aus 99,99% Aluminium. Das Target T war mit einem als Distanzteil dienenden Rahmen R vernietet. Der Kollimator K enthielt 60 Löcher von 1 mm \varnothing . Die Bohrungen waren poliert. Der Fänger C bestand aus einem elektropolierten, 0,45 mm starken Aluminium-Blech der Abmessungen 12,1 x 31,2 mm. Zwischen Kollimator und Fänger befanden sich zwei Vorfänger aus gehämmelter Aluminiumfolie (99,99%). Ihr Flächengewicht wurde durch Wägung und Ausmessen bestimmt. Die einzelnen Teile der Anordnung waren zwischen zwei Abdeckplatten A fest verschraubt.

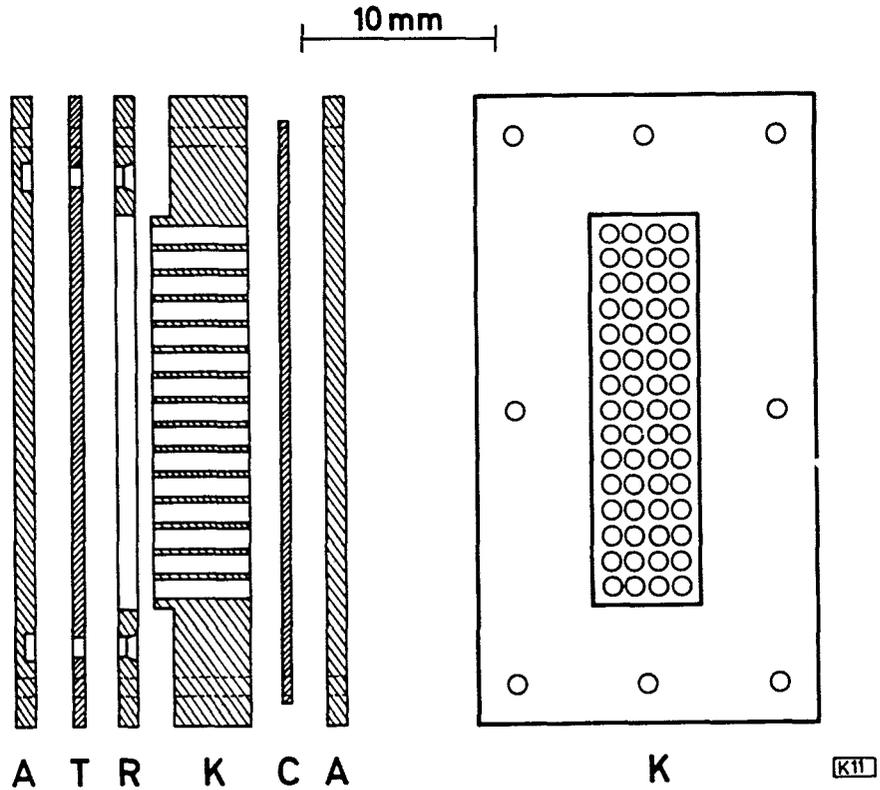


Abb. 13 Targetanordnung des Experiments 1

Vor der Bestrahlung wurde die Targetanordnung in einer Aluminiumkapsel untergebracht, die durch Zulöten im Vakuum hermetisch abgeschlossen war. Die Bestrahlung erfolgte im Reaktor El 2 des Forschungszentrums Saclay. Eine Messung des Gasdrucks in der Kapsel nach der Bestrahlung war wegen bei der Öffnung auftretender Schwierigkeiten nicht möglich.

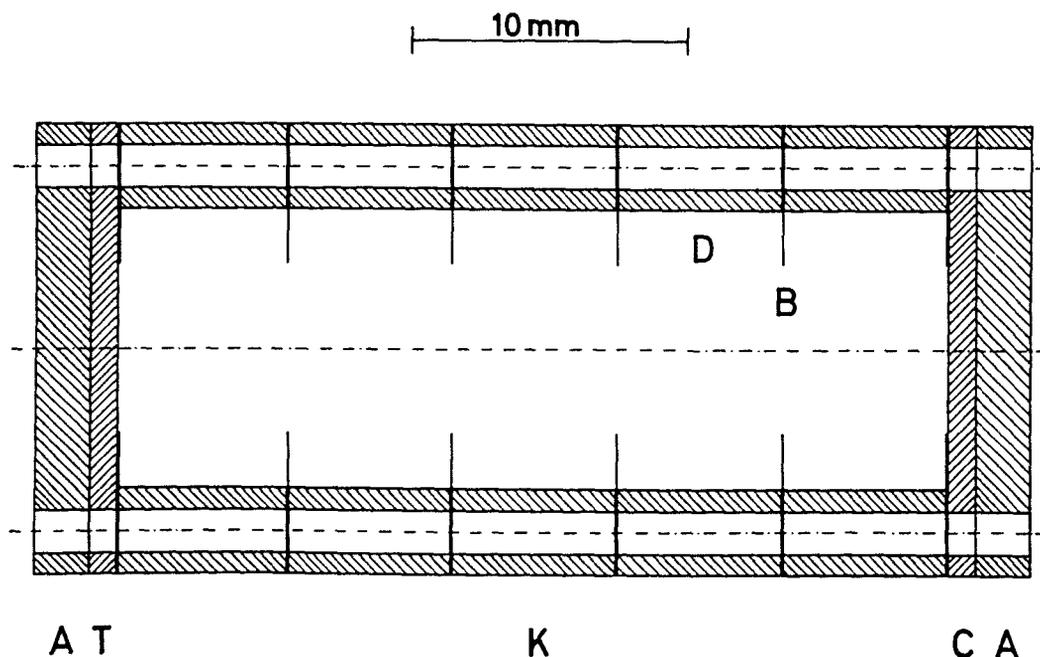
Nach Demontage der Targetanordnung wurden vom Hauptfänger 50 Schichten (jeweils ca. $75 \mu\text{g Al/cm}^2$) mit Hilfe der Stripping-Technik abgelöst. Das geschah nach dem in Abschnitt 5.1. geschilderten Verfahren. Der Trägergehalt der Stripping-Lösung betrug je $0,3 \mu\text{g Ba, Sb und Ag pro ml}$. Die Aufarbeitung der einzelnen Fraktionen erfolgte nach 5.1.a, die der Vorfänger und des Fänger-Restes nach 5.1.b.

5.2.2. Experimente 2 und 3

Die Herstellung der Targets entsprach dem beim Experiment 1 angewandten Verfahren. Der Durchmesser der exponierten Fläche betrug 6 mm. Abbildung 14 zeigt die benutzte Targetanordnung. Alle Einzelteile bestanden aus 99,99% Aluminium. Der Kollimator K war aus 5 Distanzringen D aufgebaut. Zwischen diesen, sowie auf dem Target T und Fänger C befanden sich Blendenringe, die durch Ausstanzen aus einer 0,02 mm starken Aluminiumfolie hergestellt worden waren. Als Fänger diente eine Scheibe von elektropoliertem Aluminium. Ihre Abmessungen betragen beim Experiment 2 : 0,5 x 15,8 mm, beim Experiment 3 : 1,0 x 16,0 mm (Stärke x Durchmesser).

Der Vorfänger des Experiments 2 bestand wie beim Experiment 1 aus einer gehämmerten Aluminiumfolie. Im Experiment 3 enthielt der erste Distanzring 2 mm vom Target entfernt eine Folie aus Aluminiumoxyd ($100 \mu\text{g Al}_2\text{O}_3/\text{cm}^2$). Diese wurde durch anodische Oxydation nach Hauser und Kerler (36) hergestellt. Ihr Flächengewicht ergab sich aus der angelegten Spannung von 200 Volt.

Vor der Bestrahlung wurden die mit Gewindestangen fest verschraubten Targetanordnungen unter Vakuum in Quarzampullen eingeschmolzen. (Abschmelzdruck : $2 \cdot 10^{-2}$ Torr bei 100°C). Diese waren an einem Ende durch eine angeschmolzene Scheibe abgeschlossen, die in der Mitte eine Vertiefung besaß. Die äußeren Abmessungen betragen 58 x 21 mm (Länge x Durchmesser). Die Bestrahlungen erfolgten im Reaktor FR 2 des Kernforschungszentrums Karlsruhe.



K12

Abb. 14 Targetanordnung der Experimente 2 und 3

Eine Messung des Gasdrucks in der Ampulle nach der Bestrahlung wurde mittels der in Abbildung 15 dargestellten Öffnungsapparatur durchgeführt.

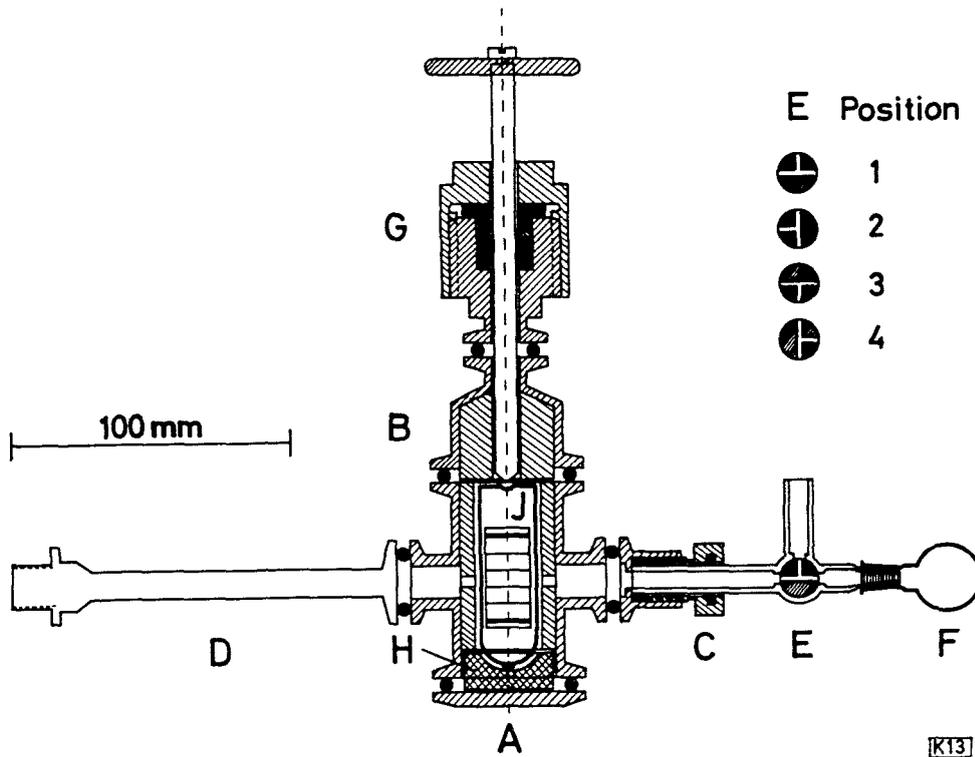


Abb. 15 Öffnungsapparatur zur Messung des Gasdrucks in der Targetanordnung

Diese bestand aus den Leybold-Kleinflanschverbindungen A,B und C, der Stopfbuchse G mit Öffnungsdorn, dem über den Dreiweghahn E angeschlossenen Eichkolben F und der Meßröhre D. Zur Verringerung des Totvolumens waren die Teile A und B mit Blei ausgekleidet. Die Kleinflanschverbindung A nahm die Quarzampulle J auf. Diese ruhte auf einem Gummipuffer H. Als Meßröhre diente eine $4,5\Omega$ -Ausführung des "Autovac"-Gerätes von LKB.

Die Stopfbuchse entspricht dem von Billet und Bishop (37) beschriebenen Bauteil. An dem freien Ausgang des Dreiweghahns war über ein Regulierventil eine zwei-stufige Rotationspumpe angeschlossen.

Die Messung erfolgte nach der Vorschrift:

Bei Hahnstellung 1 eine Stunde auf ca. $4 \cdot 10^{-2}$ Torr evakuieren. Bei Stellung 4 im Eichkolben den Druck $P_2 = 10$ Torr und bei Stellung 2 im linken Teil der Apparatur den Druck $P_1 = 0,1$ Torr mit Hilfe des Regulierventils einstellen. Unmittelbar darauf bei Stellung 3 den Druck P_3 messen. In der gesamten Apparatur bei Stellung 1 den Druck $P_A = 1,0$ Torr einstellen. Bei Stellung 3 Ampulle durch Niederdrücken des Stempels öffnen und Stempel auf die Ausgangsposition zurückziehen. Anschließend den Druck P_E messen. Bei Stellung 4 im Eichkolben den Druck $P_2' = 10$ Torr und bei Stellung 2 im linken Teil der Apparatur den Druck $P_1' = 0,1$ Torr einstellen. Bei Stellung 3 den Druck P_3' messen.

Den Gasdruck P_x in der Ampulle ergab die Beziehung:

$$P_x = \frac{P_E}{V_2} (V_1 + V_2 + V_H) - \frac{P_A}{V_2} (V_1 + V_H)$$

mit:

$$V_1 = V_H \frac{P_2 - P_3}{P_3 - P_1} ; \quad V_1 + V_2 = V_H \frac{P_2' - P_3'}{P_3' - P_1'}$$

Die Werte für P und V sind in Torr und cm^3 einzusetzen. V_H ist das Volumen des Eichkolbens bis zum Küken des Dreiweghahns. Es betrug $5,9 \text{ cm}^3$. Beim Experiment 2 war $P_x = 2,5$ Torr, beim Experiment 3 wurde der Wert $P_x = 16$ Torr ermittelt. Die Genauigkeit dieser Messung dürfte auf $\pm 50\%$ beschränkt sein. Sie ist jedoch für das hier angestrebte Ziel ausreichend.

Nach der Druckmessung wurde die Ampulle aufgebrochen und die Targetanordnung auseinandergenommen. Die Aluminiumoxydfolie des Experiments 3 wies keinerlei Beschädigungen auf. Die Ablösung der dünnen Schichten vom Hauptfänger erfolgte unter den gleichen Bedingungen wie bei Experiment 1 (siehe Abschnitt 5.1. und 5.2.1.). Es wurden lediglich pro Stripping-Fraktion 5 ml Stripping-Lösung mit $0,3 \mu\text{g}$ Ba-Träger/ml eingesetzt.

Vor Beginn des radiochemischen Trennungsganges für Ba wurde eine Vortrennung ausgeführt. Diese geschah nach folgender Vorschrift:

a) Stripping-Lösung:

Stripping-Lösung nach Zugabe von 20 mg Ba-Träger mit 1 ml einer 30 %igen Ammonacetatlösung und 1 ml NH_4OH konz. erhitzen. Niederschlag abzentrifugieren und mit ammoniakalischem Wasser waschen. Nach Abzentrifugieren den Rückstand unter Erhitzen in 1 ml HCl konz. lösen. Ba mit 15 ml HCl -Äther-Mischung (5:1) im Eisbad fällen. Niederschlag abzentrifugieren, mit HCl -Äther-Mischung waschen und erneut abzentrifugieren. Niederschlag in 1 ml H_2O lösen.

b) Vorfänger und Blendenringe:

Folien in 2 ml 40 %iger NaOH nach Zugabe von 20 mg Ba-Träger lösen. 1 ml gesättigte Na_2CO_3 -Lösung zusetzen, erwärmen und abzentrifugieren. Niederschlag zweimal mit karbonathaltigem Wasser waschen und anschließend in 1 ml 6n HCl lösen.

Bei der Aktivierungsanalyse für das Experiment 3 wurde die Hälfte des ersten Blendenringes und die Aluminiumoxyd-Folie zusammen mit zwei als Standard dienenden Folien einer 0,1 %igen Legierung von Pu-239 in Aluminium bestrahlt. Die als Standard eingesetzte Pu-239-Menge entsprach jeweils ungefähr 1,5 μg . Die Bestrahlung erfolgte im Reaktor FR 2 des Kernforschungszentrums Karlsruhe über 10 min mit einem Neutronenfluß von $3 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$. Anschließend wurden die Bestrahlungsproben nach Vorschrift b) dieses Abschnitts aufgearbeitet.

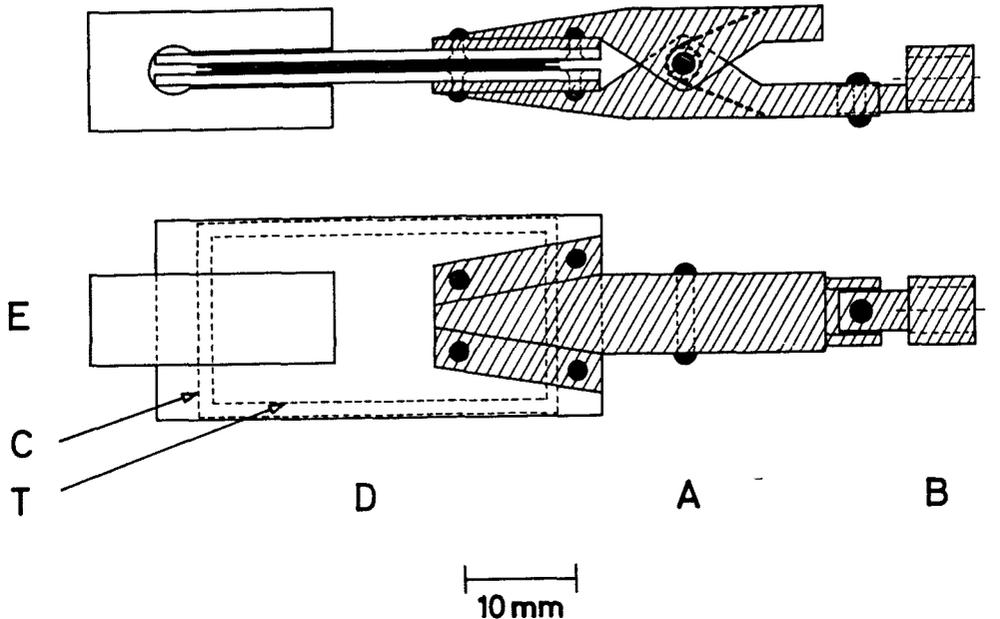
5.3. Reichweiten innerhalb der isobaren Reihe 139

Die Bestrahlungen erfolgten in der Rohrpostanlage des Reaktors FR 2 des Kernforschungszentrums Karlsruhe.

Als Targets dienten 5 bis 8 mg/cm^2 starke Folien einer Legierung von Pu-239 in Aluminium. Sie wurden nach dem Auswalzen und Elektropolieren (35) unter einer Stahlschablone auf die Abmessungen 15 x 30 mm zugeschnitten. Das Flächengewicht ergab sich durch Wägung. Der Pu-Gehalt betrug bei der Bestimmung der Fragmentreichweite des Ba-139 0,01%, bei der Bestimmung der Isobarenreichweite und der Fragmentreichweite des Cs-139 0,1%. Eine Kontrolle dieser Werte erfolgte durch entsprechende Analysen im Institut für Radiochemie des Kernforschungszentrums Karlsruhe⁺). Die Fänger bestanden aus 0,02 mm starken Aluminiumfolien (99,99% Al).

⁺) Herrn Dr. Wolf und Herrn Reinhardt sei an dieser Stelle für die Durchführung der Analysen gedankt.

Sie hatten die Abmessungen 18 x 64 mm und waren um die Mitte ihrer Längsachse zusammengefaltet. Abbildung 16 zeigt den Aufbau der Targetanordnung.



K14

Abb. 16 Targetanordnung bei den Reichweiteuntersuchungen der isobaren Reihe 139

Die Fänger- und Targetfolien C und T wurden zwischen zwei Aeternamidplatten D durch die angenietetete Aluminiumklammer A fest aufeinandergepreßt. Diese war an ihrem Ende mit dem Gewinde B versehen, das zur Befestigung der Anordnung im Deckel der Rohrpostkapsel diente. Zur Verstärkung des Anpreßdruckes war über die Aeternamidplatten eine Klammer E aus Aeternamid geschoben.

Die Pu-Al-Legierungen wurden nach folgender Vorschrift hergestellt:

2,26 g Aluminium (99,99%) mit einer Mischung aus 60 Teilen H_2O , 6 Teilen 70 %iger HNO_3 und 3 Teilen 50 %iger HF anätzen. Nach dem Trocknen mit 223 mg metallischem Pu-239 in einem Tiegel aus gesintertem Aluminiumoxyd unter Vakuum (0,2 Torr, Quarzrezipient) bei ca. $850^\circ C$ im Tiegelofen zusammenschmelzen. Die Schmelze 10 bis 15 min unter gelegentlichem Schütteln des Rezipienten auf ca. $900^\circ C$ halten und anschließend abkühlen lassen. Aus dieser 10 %igen Legierung ist nach derselben Arbeitsweise die gewünschte Pu-Konzentration von 0,1 bzw. 0,01% durch stufenweises Verdünnen mit Aluminium auf jeweils 1/10 zu erreichen.

5.3.1. Kumulative Reichweite des Ba-139

Die Targetanordnungen wurden 10 sec bei einem Neutronenfluß von $3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ bestrahlt. Ungefähr 1,5 h nach der Bestrahlung erfolgte das Lösen der Folien entsprechend der im Abschnitt 5.2.2. gegebenen Vorschrift.

5.3.2. Fragmentreichweite des Ba-139

Nach einer 10 sec-Bestrahlung bei einem Neutronenfluß von $3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ wurde aus der Target- und der Fängerfolie Ba-139 nach folgender Vorschrift abgetrennt:

Die Folien separat in zwei mit Uhrgläsern bedeckten 50 ml-Bechergläsern lösen. Lösungsmittel : 5 ml heiße 30 %ige NaOH mit je 30 mg Ba- und 20 mg Cs-Träger, sowie 0,8 μC Cs-137. Nach dem Auflösen Ba mit 5 ml 10 %iger Na_2CO_3 -Lösung fällen. Den Karbonatniederschlag über ein Blaubandfilter absaugen und mit 5 ml heißem Wasser waschen.

Diese Trennung war in ungefähr 30 sec durchzuführen. Als Trennzeit wurde der Zeitpunkt des Waschens betrachtet.

Die weitere Behandlung des Niederschlags und des Filtrats erfolgte nach der Vorschrift:

Das Filtrat, sowie Reste der Lösung am Uhrglas, im Becherglas, im Kamin und in der Nutsche in ein Zentrifugenglas überführen. 20 mg Ba-Träger zugeben und ungefähr 50 min nach Bestrahlungsende Ba mit 2 ml gesättigter Na_2CO_3 -Lösung fällen. Niederschlag abzentrifugieren, mit Wasser waschen und in 1 ml 6n HCl lösen. Mit dieser Lösung einen Ba-Trennungsgang durchführen. Das Filter mit dem BaCO_3 -Niederschlag in einen Weithals-Erlenmeyerkolben überführen. Den Niederschlag mit 3 ml 1n HCl unter Erwärmen lösen und nach Abkühlen das Ba mit Titriplex entsprechend der üblichen Analysenvorschrift titrieren. Anschließend 20 mg Cs-Träger zugeben und das Filter unter Abspülen herausnehmen. Ungefähr 50 min nach Bestrahlungsende etwas NaCl zugeben und aus der heißen, ammoniakalischen Lösung Ba mit 2 ml gesättigter Na_2CO_3 -Lösung fällen. Den Niederschlag abzentrifugieren. Nach Waschen mit Wasser in 1 ml 6n HCl lösen und zum Ba-Trennungsgang einsetzen. Mit der nach dem Zentrifugieren anfallenden Lösung einen Cs-Trennungsgang durchführen.

Die Ermittlung des beim Lösen auftretenden Xe-139-Verlustes erfolgte mit Hilfe einer vereinfachten Ausführung der im Abschnitt 5.3.3. beschriebenen Apparatur. Sie bestand aus einem 50 ml-Erlenmeyerkolben mit Schliffstopfen, an den über eine Hahnverbindung ein 10 ml-Tropftrichter und ein Kugelschliff angeschmolzen war. Dieser verband das Lösegefäß mit einem evakuierten 500 ml-Rundkolben. Der Tropftrichter war an seinem oberen Ende durch ein Rückschlagventil verschlossen und enthielt 3 ml heiße 50 %ige Natronlauge. Im Erlenmeyerkolben befanden sich 2 ml einer heißen Lösung von 30 mg Ba- und 20 mg Cs-Träger, sowie 0,8 µC Cs-137. Der Rundkolben enthielt je 20 mg Ba- und Cs-Träger. Um die unterschiedlichen Mengen des zu lösenden Aluminiums zu simulieren, wurden jeweils 30 mg Folie einer 0,01 %igen Pu-Al-Legierung als "Target" und die gleiche Menge desselben Materials zusätzlich mit 35 mg Aluminiumfolie als "Fänger" zusammen bestrahlt (10 sec bei $3 \cdot 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$). 20 sec nach der Bestrahlung wurden "Target" und "Fänger" in die Erlenmeyerkolben überführt. Nach Aufsetzen der Schliffstopfen wurden die Hähne der Rundkolben geöffnet. Sofort darauf erfolgte durch Zugabe der Natronlauge aus den Tropftrichtern die Auflösung der Folien. Ungefähr 50 min nach Bestrahlungsende wurde aus den Lösungen der Erlenmeyerkolben Ba und aus den Lösungen der Rundkolben Ba und Cs nach folgender Vorschrift abgetrennt:

Die Lösungen quantitativ in Zentrifugengläser überführen. Ba mit 2 ml gesättigter Na_2CO_3 -Lösung fällen. Den Niederschlag abzentrifugieren und mit Wasser waschen. In 1 ml 6n HCl lösen und zum Ba-Trennungsgang einsetzen. Mit den aus den Rundkolben nach der Ba-Abtrennung anfallenden Lösungen einen Cs-Trennungsgang durchführen.

Mit den daraus erhaltenen Cs-137-Aktivitäten konnte für eine Verschleppung aus den Lösegefäßen in den Rundkolben korrigiert werden. Die unterschiedlichen Aluminiummengen des "Targets" und "Fängers" wirkten sich nicht auf das Ergebnis aus.

5.3.3. Fragmentreichweite des Cs-139

Nach einer 2 sec-Bestrahlung bei einem Neutronenfluß von $3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ wurde aus der Target- und der Fängerfolie Xe-139 in zwei Ausführungen der in Abbildung 17 wiedergegebenen Apparatur abgetrennt. Diese bestand aus einem Lösegefäß A, aus dem das Xe mit Hilfe von He als Treibgas in den auf 5 Torr evakuierten 1 l-Kolben B ausgetrieben werden konnte. Das Lösegefäß war über die Fritte F (Glasfilterplatte Gl) und den Hahn D2 mit der Treibgas-Zuführung und über den Hahn D1 mit dem Tropftrichter C verbunden. Um ein Eindringen von Lösung in den Raum unterhalb der Fritte zu verhindern, enthielt die Treibgas-Zuleitung das Rückschlagventil E2. Das He wurde einer Stahlflasche entnommen, an die ein Rotameter und ein Überdruckventil mit 500 mm Wassersäule angeschlossen war.

Einen Abschluß des Tropftrichters gegen von außen eindringende Luft ermöglichte das Rückschlagventil El. Tropftrichter und Lösegefäß waren über einen Thermostaten mit Glykol auf 90 °C temperiert.

Vor der Bestrahlung wurden die Tropftrichter mit 10 ml 30 %iger Natronlauge gefüllt, die je 20 mg Ba- und Cs-Träger, sowie 0,8 µC Cs-137 enthielten. Die Herstellung dieser Lösung erfolgte erst kurz vor der Bestrahlung, um eine Ausfällung des Ba-Trägers durch das Kohlendioxyd der Luft zu verhindern.

Die Kolben enthielten je 20 mg Ba- und Cs-Träger. Der Gasdurchfluß wurde bei geschlossenem Hahn D2 auf 2 l/min eingestellt.

Nach Überführung der bestrahlten Target- und Fängerfolie in die Lösegefäße wurden die Schliffstopfen aufgesetzt und die Hähne D3 und D2 geöffnet. Die Zugabe der Lösung aus dem Tropftrichter erfolgte durch kurzes Öffnen des Hahnes D1. Nach beendiger Auflösung der Folien wurden die Hähne D2 und D3 wieder geschlossen.

Die Trennung war in ungefähr 20 sec durchzuführen. Als mittlere Trennzeit wurde das Ende der Auflösung betrachtet.

60 min nach Bestrahlungsende erfolgte aus den Lösungen der Kolben eine Abtrennung von Ba und Cs, aus den Lösungen der Lösegefäße eine Abtrennung von Ba nach der auf Seite 64 gegebenen Vorschrift. Aus den Rückständen in den Tropftrichtern wurde nach Zugabe von 20 mg Cs-Träger Cs-137 isoliert, um für die nicht vollständige Überführung der eingesetzten Trägermenge und der Cs-137-Aktivität korrigieren zu können.

Die Ermittlung der Ausbeute der Xe-139-Abtrennung erfolgte unter den oben geschilderten experimentellen Bedingungen. Dabei wurde der zeitliche Verlauf der Xe-Austreibung aus dem Lösegefäß untersucht. Dieses war über eine Kugelschliff-Verbindung an fünf evakuierte 500 ml-Kolben angeschlossen. Sie enthielten je 20 mg Ba- und Cs-Träger. Nach dem Entleeren des Tropftrichters wurde das Xe in Intervallen von 5 sec in die einzelnen Kolben ausgetrieben. Die Aufarbeitung der Lösungen erfolgte nach der auf Seite 64 gegebenen Vorschrift.

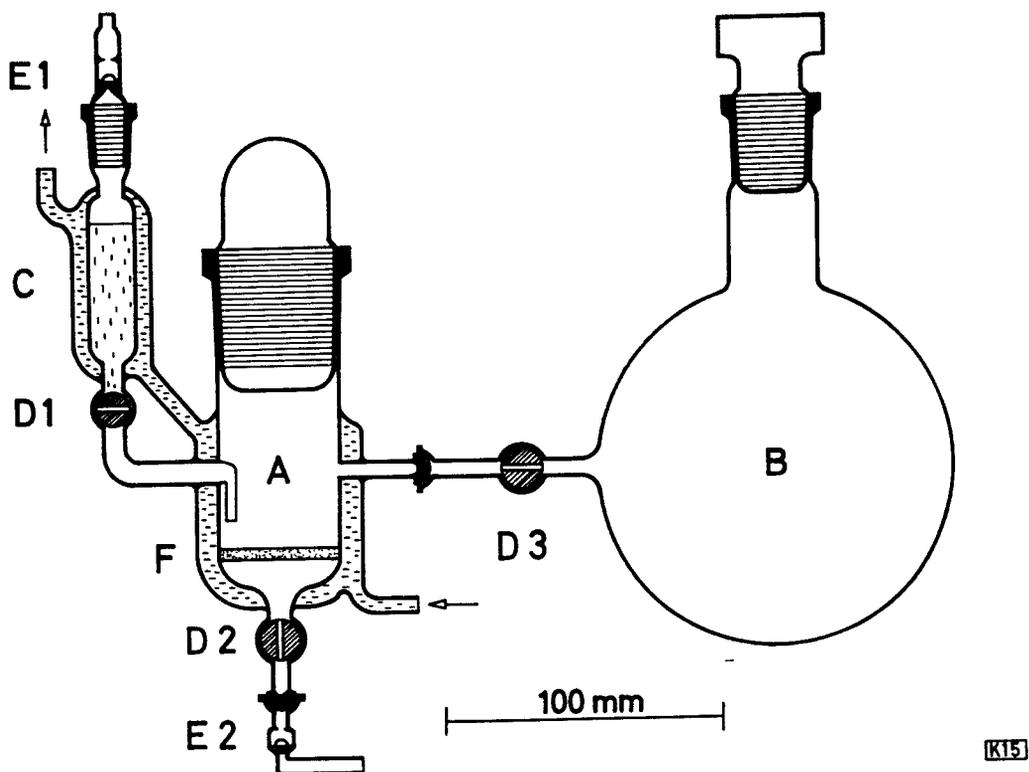


Abb. 17 Apparatur zur schnellen Abtrennung von Xe-139

5.4. Radiochemische Trennungsgänge

Die radiochemischen Trennungsgänge für Cs, Ba und Ag entsprechen den allgemein üblichen Verfahren. Im einzelnen wurden folgende charakteristische Reinigungsschritte durchgeführt:

Cs : 1 Silicowolframatfällung, 2 x Waschen

1 Perchloratfällung, 2 x Waschen

2 Eisenhydroxydfällungen

1 Perchloratfällung, 3 x Waschen

Ba: 2 Chloridfällungen, je 1 x Waschen

2 Eisenhydroxydfällungen

1 Karbonatfällung, 1 x Waschen

2 Chloridfällungen, je 1 x Waschen

Ag : 1 Eisenhydroxydfällung

1 Sulfidfällung, 2 x Waschen

1 Chloridfällung, 2 x Waschen

1 Eisenhydroxydfällung

1 Sulfidfällung, 2 x Waschen

1 Eisenhydroxydfällung

1 Chloridfällung, 1 x Waschen

Der Trennungsgang für Sb bestand aus einer Verflüchtigung als SbH_3 durch Reduktion mit Zink in 10n H_2SO_4 unter Anwesenheit von 2 mg TeVI-Rückhalteträger. Das SbH_3 wurde nach Durchleiten durch ein U-Rohr (mit Raschigringen und Wasser gefüllt) und ein Kalziumchloridrohr in einer Quarzröhre thermisch zersetzt. Der Sb-Spiegel wurde in 0,5 ml H_2SO_4 konz. gelöst. Die Endfällung erfolgte durch Oxin in essigsaurer Lösung bei p_{H} 6.

Die Ermittlung der chemischen Ausbeute der Trennungsgänge geschah durch Wägung der Präparat-Niederschläge.

Alle verwendeten Trägerlösungen wurden nach Methoden der analytischen Chemie gravimetrisch standardisiert. Bei den einzelnen Elementen erfolgte diese Standardisierung als Cs_2PtCl_6 , BaSO_4 , Sb-Oxinat und AgCl .

5.5. Meßtechnik und Analyse der Abfallkurven

Die Aufnahme der β^- -Abfallkurven erfolgte durch Aktivitätsmessungen, die sich jeweils über mindestens fünf Halbwertszeiten des zu untersuchenden Nuklids erstreckten. Als Detektoren dienten Methan-Durchflußzähler (Telefunken MS MD 632/2) in Verbindung mit digitalen Zählgeräten (Telefunken MS Str 610/2). In einigen Fällen waren an diese Probenwechsler angeschlossen (Telefunken MS AP 731/1). Bei der Auswertung der Meßergebnisse wurde durch Korrekturen berücksichtigt:

1. Zeitinkonstanz der Meßanordnung. Sie wurde durch Standardmessungen ermittelt.
2. Totzeit der Meßanordnung. Diese wurde für jedes Gerät durch einen J-128-Abfall bestimmt.
3. Unterschiedliche Geometrie von Wechslerpositionen. Sie wurde durch Messung eines starken Präparates des betreffenden Nuklids in verschiedenen Positionen untersucht.
4. Selbstabsorption. Für alle untersuchten Nuklide wurden Selbstabsorptionskurven aufgenommen.

Eine Korrektur für die Aktivierung des bei der Herstellung der untersuchten Fänger, Blendenringe und Fängerfolien verwendeten Aluminiums war nicht notwendig. Die Untersuchung einiger bei mehreren Experimenten mit der Targetanordnung bestrahlter Aktivierungsproben ergab keine nennenswerten Zählraten für Ba-139, Ba-140, Sb-127 und Ag-111.

Die Analyse der Abfallkurven erfolgte beim Ag-111 graphisch, bei den anderen Nukliden mit Hilfe der IBM-Rechenanlage des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Durch ein von Münzel (38) programmiertes Analysenverfahren wurden die komplexen Abfallkurven in folgende Halbwertszeit-Komponenten aufgelöst:

Reichweiteverteilung

und Stripping-Methode: 12,8 d (Ba-140) ; 40,3 h (La-140)
3,82 d (Sb-127) ; 82,4 d (Untergrund)

Fragmentreichweiten : 83 min (Ba-139) ; 40,3 h (La-140) ; 12,8 d (Ba-140)

Die angegebenen Halbwertszeiten wurden gesondert ermittelt.

Für jede Komponente ergaben die Analysen die auf einen vorgegebenen Zeitpunkt extrapolierte, korrigierte Zählrate und deren Standardabweichung. Die Beurteilung der Statistik war durch eine in der Datenausgabe dargestellte Verteilung der Abweichungen möglich.

6. ANHANG

6.1. Mathematische Ableitungen

6.1.1. Stripping-Verschleppung

Mit den gefundenen Aktivitäten A^i , den tatsächlich vorhandenen Aktivitäten A und dem konstanten Verschleppungsfaktor k gilt über eine Reihe von n Fraktionen für jede einzelne Fraktion i :

$$\begin{aligned} A_1^i &= A_1 - k A_1 = A_1 (1 - k) \\ A_2^i &= A_2 + k A_1 - k (A_2 + k A_1) = A_1 (k - k^2) + A_2 (1 - k) \\ &\cdot \\ &\cdot \\ &\cdot \\ A_n^i &= A_1 (k^{n-1} - k^n) + A_2 (k^{n-2} - k^{n-1}) + \dots + A_n (k^0 - k^1) \\ A_n^i &= \sum_{i=1}^{i=n} A_i (k^{n-i} - k^{n-i+1}) = (1 - k) \sum_{i=1}^{i=n} A_i k^{n-i} \end{aligned} \quad (1)$$

Demnach gilt für jede einzelne Fraktion i :

$$A_i = \frac{A_i^i - k A_{i-1}^i}{1 - k} \quad (1a)$$

Sonderfall für konstantes A_i :

$$A_n^i = (1 - k) A_i \sum_{i=1}^{i=n} k^{n-i} = A_i (1 - k^n) \quad (2)$$

Damit ist für jede einzelne Fraktion i :

$$A_i = \frac{A_i^i}{1 - k^i} \quad (2a)$$

6.1.2. Reichweiteformel (dickes Target - dicker Fänger - Methode)

Die Ableitung erfolgt im wesentlichen nach Walton und Croall (39).

Voraussetzungen : isotrope Verteilung der Fragmente, homogener Teilchenfluß im Target, symmetrische Verteilung der mittleren Reichweite und Target-Homogenität.

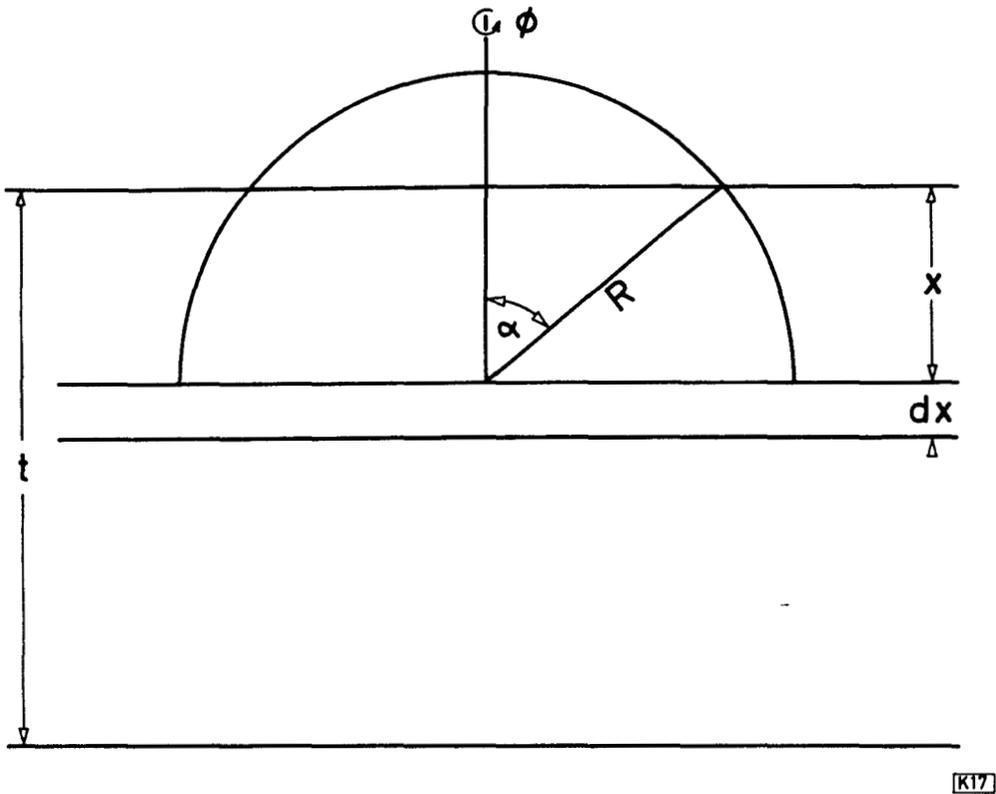


Abb. 18 Zur Ableitung der Reichweiteformel

t : Dicke des Targets in cm

R : Reichweite der Fragmente in cm

Die Anzahl der in einer Targetschicht der Dicke dx gebildeten Fragmente beträgt

$$dN = S \cdot dx$$

mit $S = \text{Anzahl der Spaltungen} / \text{cm}^3$.

Die Wahrscheinlichkeit für das Auftreten eines in der Schicht dx erzeugten Fragmentes im Winkelinkrement $d\alpha$ zur Oberflächennormalen und $d\phi$ zur Oberfläche ist

$$P = \frac{1}{4\pi} \sin \alpha \cdot d\alpha \cdot d\phi$$

Die Anzahl N_F der aus einer Targetoberfläche O in den Fänger austretenden Fragmente ist

$$N_F = \int P \cdot dN$$

mit den Grenzbedingungen

$$0 < x < R, \quad 0 < \alpha < \arccos \frac{x}{R}, \quad 0 < \phi < 2\pi$$

Daraus folgt:

$$\begin{aligned} N_F &= \int_{x=0}^R \int_{\alpha=0}^{\arccos \frac{x}{R}} \int_{\phi=0}^{2\pi} \frac{S}{4\pi} \sin \alpha \cdot d\alpha \cdot d\phi \cdot dx \\ &= \frac{S}{2} \int_{x=0}^R \int_{\alpha=0}^{\arccos \frac{x}{R}} \sin \alpha \cdot d\alpha \cdot dx \\ &= \frac{S}{2} \int_{x=0}^R \left(1 - \frac{x}{R}\right) dx = \frac{S}{2} \left(R - \frac{R}{2}\right) \end{aligned}$$

$$N_F = \frac{1}{4} S \cdot R, \quad R = \frac{4 N_F}{S}$$

Mit den Aktivitäten A^T im Target und A^F im Fänger, der beide Targetoberflächen bedeckt, ist

$$N_F = \frac{A^F}{2 \cdot 0}$$

$$S = \frac{A^T + A^F}{0 \cdot t}$$

$$R = \frac{2 A^F}{0} \frac{0 \cdot t}{A^T + A^F}$$

$$R = \frac{A^F}{A^F + A^T} \cdot 2 \cdot t$$

(16)

6.2. Korrekturen bei der Berechnung der Fragmentreichweiten

6.2.1. Ba-139

Bezeichnet man mit A die zum Zeitpunkt der ersten Trennung vorhandenen, korrigierten Ba-139-Aktivitäten und mit A' die auf diese Zeit extrapolierten gefundenen Ba-139-Aktivitäten, so gilt mit der Indizierung nach Seite 38 für Target und Fänger:

$$\frac{A_f'}{c} = z a \frac{A_n}{1+T} + b \left(A_n \frac{T}{1+T} + A_f \right) \quad (24)$$

$$\frac{A_n'}{d} = (1 - z a) \frac{A_n}{1+T} + (1 - b) \left(A_n \frac{T}{1+T} + A_f \right) \quad (25)$$

Die Größen c und d berücksichtigen die Ausbeute des radiochemischen Ba-Trennungsganges. z a ist die Korrektur für die Aktivitätsverschleppung in den BaCO₃-Niederschlag. b stellt die Ausbeute der ersten Karbonatfällung dar. Durch T wird für die Nachbildung korrigiert (Bateman-Gleichung).

Eine Umformung der Beziehungen 24 und 25 ergibt Bestimmungsgleichungen für die in die Reichweiteformeln 17 und 18 einzusetzenden korrigierten Ba-139-Aktivitäten:

$$A_f = \frac{\frac{o}{c} A_f' - \frac{m}{d} A_n'}{b - z a} \quad (26)$$

$$A_n = \frac{1+T}{o} \left(\frac{A_n'}{d} - (1-b) A_f \right) \quad (27)$$

Die einzelnen Korrekturgrößen sind gegeben durch:

$$a = \frac{s \cdot P_2}{S \cdot p - s \cdot P_1} ; \quad b = \frac{v}{V}$$

$$c = \frac{\xi_f}{b \cdot G_f} ; \quad d = \frac{\xi_n}{G_n + (1-b) G_f}$$

$$o = 1 - z a + (1 - b) T ; \quad m = z a + b T$$

$$z = \frac{y_{3c} (e^{-\lambda_3 t_1} - e^{-\lambda_2 t_1}) + y_{3f} 0,96 e^{-\lambda_2 t_1}}{y_{2c} (1,01 e^{-\lambda_3 t_1} - x \cdot e^{-\lambda_2 t_1}) + y_{3f} e^{-\lambda_3 t_1}}$$

$$T = \frac{y_{2c} (e^{-\lambda_4 t_1} - 1,06 \cdot e^{-\lambda_3 t_1} + 6,4 \cdot 10^{-2} e^{-\lambda_2 t_1}) + y_{3f} (e^{-\lambda_4 t_1} - 0,994 e^{-\lambda_3 t_1})}{(1 - e^{-\lambda_3 \Delta t}) \left[y_{2c} (1,01 e^{-\lambda_3 t_1} - x \cdot e^{-\lambda_2 t_1}) + y_{3f} \cdot e^{-\lambda_3 t_1} \right]}$$

Dabei bedeuten:

- G : eingesetzter Ba-Träger, in mg
 G_f : vor der 1. Trennung zugegeben
 G_n : nach der 1. Trennung dem Filtrat zugesetzt
- P : eingesetzter Cs-Träger, in mg
 P_1 : vor der 1. Trennung zugegeben
 P_2 : nach der 1. Trennung zugegeben
- S : eingesetzte Cs-137 Aktivität
- V : Verbrauch bei der titrimetrischen Bestimmung von G_f , in ml
- v : Verbrauch bei der titrimetrischen Bestimmung des Ba im 1. Karbonat-Niederschlag, in ml
- g : gefundene Trägermenge im Ba-139-Präparat, in mg
- p : gefundene Trägermenge im Cs-137-Präparat der $BaCO_3$ -Fraktion, in mg
- s : gefundene Aktivität im Cs-137-Präparat der $BaCO_3$ -Fraktion
- Δt : Zeit zwischen 1. Trennung und Beginn des Ba-Trennungsganges
- y_i : Spaltausbeute des i-ten Gliedes der isobaren Reihe
- λ_i : Zerfallswahrscheinlichkeit des i-ten Gliedes der isobaren Reihe

Die numerischen Faktoren in den Ausdrücken für z und T ergeben sich aus einer Zusammenfassung mehrerer Glieder der Bateman-Gleichung.

Zur Veranschaulichung sind in Tabelle 12 für den Versuch 1 die Abweichungen wiedergegeben, die durch eine Variation der Größen Z_p , x und z entstehen (vergleiche Seite 42). Die wahrscheinlichsten Werte für R_f/R_c und R_n/R_c ergeben sich für $Z_p = 54,1$; $x = 0,38$ und $z = 0,790$.

Tabelle 12

Z_P	x	z	T	$\frac{R_f}{R_c}$	$\frac{R_n}{R_c}$
53,6	0	1	$6,32 \cdot 10^{-2}$	0,925	1,010
	0,38	1	$7,26 \cdot 10^{-2}$	0,924	1,009
	1,0	1	$9,58 \cdot 10^{-2}$	0,911	1,010
54,1	0	1	$7,77 \cdot 10^{-2}$	0,919	1,009
	0,38	1	$8,68 \cdot 10^{-2}$	0,915	1,009
	1,0	1	$1,07 \cdot 10^{-1}$	0,905	1,009
54,6	0	1	$9,94 \cdot 10^{-2}$	0,909	1,009
	0,38	1	$1,06 \cdot 10^{-1}$	0,905	1,010
	1,0	1	$1,20 \cdot 10^{-1}$	0,897	1,010
53,6	0	0,632	$6,32 \cdot 10^{-2}$	0,925	1,009
	0,38	0,725	$7,26 \cdot 10^{-2}$	0,922	1,009
	1,0	0,958	$9,58 \cdot 10^{-2}$	0,910	1,009
<u>54,1</u>	0	0,708	$7,77 \cdot 10^{-2}$	0,919	1,009
	<u>0,38</u>	<u>0,790</u>	$8,68 \cdot 10^{-2}$	<u>0,915</u>	<u>1,009</u>
	1,0	0,975	$1,07 \cdot 10^{-1}$	0,904	1,010
54,6	0	0,815	$9,94 \cdot 10^{-2}$	0,909	1,009
	0,38	0,872	$1,06 \cdot 10^{-1}$	0,905	1,009
	1,0	0,983	$1,20 \cdot 10^{-1}$	0,896	1,009

6.2.2. Cs-139

Bezeichnet man mit A'' die zur Zeit t_2 vorhandene Ba-139-Aktivität und A' die auf diesen Zeitpunkt extrapolierte gefundene Ba-139-Aktivität, so gilt mit der Indizierung nach Seite 38 für Target und Fänger:

$$\frac{A'_f}{c} = (1 - a) A''_f + (1 - v) A''_n \quad (28)$$

$$\frac{A'_n}{d} = a A''_f + v A''_n \quad (29)$$

Die Größen c und d berücksichtigen die Ausbeute des radiochemischen Ba-Trennungsganges. a stellt die Korrektur für die Aktivitätsverschleppung aus dem Lösegefäß in den Kolben dar. Mit v wird für den Volumenanteil korrigiert.

Die in die Reichweiteformeln 17 und 18 einzusetzenden korrigierten Cs-139-Aktivitäten A zum Zeitpunkt t_2 ergeben sich aus den Beziehungen

$$A_f = T \left(A''_f - \frac{1-x}{x} A''_n \right) \quad (30)$$

$$A_n = U \cdot A_f + \frac{o}{x} A''_n \quad (31)$$

Aus 28 und 29, sowie aus 30 und 31 folgen als Bestimmungsgleichungen für die korrigierten Cs-139-Aktivitäten:

$$A_f = \frac{T}{v-a} \left[\frac{A'_f}{c} \left(v + a \frac{1-x}{x} \right) - \frac{A'_n}{d} \left(1 - v + (1-a) \frac{1-x}{x} \right) \right] \quad (32)$$

$$A_n = U \cdot A_f + \frac{o}{x(v-a)} \left(\frac{1-a}{d} A'_n - \frac{a}{c} A'_f \right) \quad (33)$$

Die einzelnen Korrekturgrößen sind gegeben durch:

$$a = \frac{s \cdot P_2}{S \cdot p - s \cdot P_1} \quad ; \quad c = \frac{\varepsilon_f}{(1-a)G_f}$$

$$d = \frac{\varepsilon_n}{G_n + a G_f} \quad ; \quad v = 0,93 \quad ; \quad x = 0,98$$

$$T = \frac{A_{3f} \cdot e^{-\lambda_3 \Delta t}}{k \cdot A_{1c} + m A_{3c} + A_{4c} e^{-\lambda_4 \Delta t}}$$

$$U = \frac{n A_{1c} + A_{3n} e^{-\lambda_3 \Delta t}}{A_{3f} e^{-\lambda_3 \Delta t}}$$

$$k = (6,177 e^{-\lambda_4 \Delta t} - 6,628 e^{-\lambda_3 \Delta t}) 10^{-4}$$

$$m = 0,1293 (e^{-\lambda_4 \Delta t} - e^{-\lambda_3 \Delta t})$$

$$n = (5,128 e^{-\lambda_3 \Delta t} - 5,464 e^{-\lambda_2 \Delta t}) 10^{-3}$$

$$o = \frac{7,750 (e^{-\lambda_3 \Delta t} - e^{-\lambda_2 \Delta t})}{0,937 e^{-\lambda_4 \Delta t} - 1,002 e^{-\lambda_3 \Delta t}}$$

Dabei bedeuten:

G : eingesetzter Ba-Träger, in mg

G_f : im Lösegefäß

G_n : im Kolben

P : eingesetzter Cs-Träger, in mg

P_1 : im Lösegefäß

P_2 : im Kolben

S : eingesetzte Cs-137-Aktivität im Lösegefäß

g : gefundene Trägermenge im Ba-139-Präparat, in mg

p : gefundene Trägermenge im Cs-137-Präparat, in mg

s : gefundene Cs-137-Aktivität im Kolben

Δt : Zeit zwischen 1. Trennung und Beginn des Ba-Trennungsganges

λ_i : Zerfallswahrscheinlichkeit des i-ten Gliedes der isobaren Reihe

A_i : Aktivität des i-ten Gliedes der isobaren Reihe zum Zeitpunkt der 1. Trennung (Berechnung nach der Bateman-Gleichung).

Die numerischen Faktoren in den Ausdrücken für k bis o ergeben sich aus Verhältnissen der Halbwertszeiten.

7. LITERATUR

- (01) F. Brown u. B.H. Oliver, Can. J. Chem. 39, 616 (1961)
- (02) N.K. Aras, M.P. Menon u. G.E. Gordon, NYO 10063, S. 43 - 45 (1963)
- (03) S. Katcuff, J.A. Miskel u. C.W. Stanley, Phys. Rev. 74, 631 (1948)
- (04) K.V. Marsh u. J.A. Miskel, J. Inorg. Nucl. Ch. 21, 15 (1961)
- (05) K.A. Petrzhak, Yu. Petrov u. E.A. Shlyamin, Soviet Phys. JETP 11, 1244 (1960)
- (06) E.M. Douthett u. D.H. Templeton, Phys. Rev. 94, 128 (1954)
- (07) W.M. Good u. E.O. Wollan, Phys. Rev. 101, 249 (1956)
- (08) B.L. Cohen, A.F. Cohen u. C.D. Coley, Phys. Rev. 104, 1046 (1956)
- (09) W.E. Stein, Phys. Rev. 108, 95 (1957)
- (10) J.C.D. Milton u. J.S. Frazer, Can. J. Phys. 40, 1626 (1962)
- (11) W. Walkenhorst, Naturwiss. 34, 373 (1947)
- (12) G. Hass, J. Opt. Soc. Am. 39, 532 (1949)
- (13) L. Harris, J. Opt. Soc. Am. 45, 27 (1955)
- (14) J.A. Davies, J. Friesen u. J.D. McIntyre, Can. J. Chem. 38, 1526 (1960)
- (15) J.E. Lewis u. R.C. Plumb, Intern. J. Appl. Radiation and Isotopes 1, 33 (1956)
- (16) J.A. Davies, G.C. Ball, F. Brown u. B. Domeij, Can. J. Phys. 42, 1070 (1964)
- (17) M. McCargo, J.A. Davies u. F. Brown, Can. J. Phys. 41, 1231 (1963)
- (18) E. Whitton u. J.A. Davies, J. Electrochemical Soc. (im Druck)
- (19) L.G. Preuss u. J.P. Escarfail, Nucl. Instr. Meth. 9, 212 (1960)
- (20) F. Brown, private Mitteilung (1964)
- (21) A. Rahman, private Mitteilung (1962)
- (22) N.K. Aras u. G.E. Gordon, NYO 2304, S. 28 - 29 (1961)
- (23) J.M. Alexander u. M.F. Gazdik, Phys. Rev. 120, 874 (1960)
- (24) B. Finkle, E.J. Hoagland, S. Katcuff u. N. Surgaman, NNES IV, 9, McGraw-Hill, New York, 1951, S. 463 - 471
- (25) H. Münzel u. T. Ishimori, Veröffentlichung in Vorbereitung
- (26) N. Bohr, Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-fys. Medd. 18, Nr. 8 (1948)
- (27) N. Bohr, Phys. Rev. 59, 270 (1941)
- (28) J. Gilat u. J.M. Alexander, Proc. 3rd Conf. on Reactions between Complex Nuclei, University of California Press, 1963, S. 387
- (29) J.B. Niday, Phys. Rev. 121, 1471 (1961)
- (30) D.C. Brunton u. G.C. Hanna, Can. J. Res. 28A, 190 (1950)
- (31) G.N. Walton, Quarterly Reviews of The Chemical Society, London, 15, 88 (1961)

- (32) C.D. Coryell, M. Kaplan u. R.D. Fink, Can. J. Chem. 39, 646 (1961)
- (33) A.C. Wahl, J. Inorg. Nucl. Ch. 6, 263 (1958)
- (34) P. Fong, Phys. Rev. 102, 434 (1956)
- (35) W.J. McG. Tegart, Electrolytic and chemical polishing of metals,
The Pergamon Press Ltd., London, 1956, S. 52
- (36) U. Hauser u. W. Kerler, Rev. Scient. Instr. 29, 380 (1958)
- (37) E.A. Billett u. J. Bishop, J. Scient. Instr. 35, 70 (1958)
- (38) H. Münzel, Veröffentlichung in Vorbereitung
- (39) G. Walton u. I.F. Croall, J. Inorg. Nucl. Ch. 1, 149 (1955)