

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

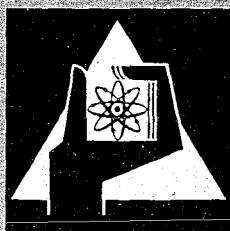
Februar 1967

KFK 534

Institut für Radiochemie

Schnelle radiochemische Trennung Seltener Erdmetalle und
einige Kernzerfallsdaten der Nuklide Pm-139, Pm-140,
Pm-141, Sm-141, Sm-142 und Sm 143

H.-J. Bleyl



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Februar 1967

K F K 534

Institut für Radiochemie

Schnelle radiochemische Trennung Seltener Erdmetalle und
einige Kernzerfallsdaten der Nuklide Pm-139, Pm-140, Pm-141,
Sm-141, Sm-142 und Sm-143

von

Hans-Jürgen Bleyl

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Inhalt

1. Einleitung	1
2. Schnelle radiochemische Trennung von benachbarten Seltene Erdmetallen	2
2.1. Trennung durch elektrophoretische Ionenfokussierung	2
2.2. Trennung durch Elutionschromatographie an Kationenaustauschersäulen	5
2.2.1. Einführung und Theorie	5
2.2.1.1. Zahl der Reaktionsschritte	7
2.2.1.2. Zeitdauer zur Ausführung eines Reaktionsschrittes	11
2.2.1.3. Schlußfolgerungen	12
2.2.2. Bestimmung der Größe und Abhängigkeit von Verteilungskoeffizienten	12
2.2.3. Bestimmung von Bodenhöhen und Diffusionskoeffizienten ..	15
2.2.4. Die optimale Größe der Verteilungskoeffizienten und die Dauer der schnellstmöglichen Trennung	17
3. Zerfallsdaten der Radionuklide Pm-139, 140, 141 und Sm-141, 142, 143	22
3.1. Bildung der Radionuklide	22
3.2. Auswertung der Messungen	24
3.3. Ergebnisse und Diskussion	25
3.3.1. Pm-141	25
3.3.2. Pm-140	27
3.3.3. Pm-139	31
3.3.4. Sm-143	32
3.3.5. Sm-142	36
3.3.6. Sm-141	38
4. Experimenteller Teil	43
4.1. Versuche zur elektrophoretischen Ionenfokussierung	43
4.2. Untersuchung der Elutionschromatographie an Kationenaustauschersäulen	43
4.3. Bestrahlung und Aufarbeitung von Nd-142 (Trennungen)	45
4.4. Messungen und Meßgeräte	47
5. Zusammenfassung	48
6. Literatur	49

1. Einleitung

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, Kernzerfallsdaten der bisher unbekannt Nuklide Pm-140 und Sm-141 zu bestimmen. Pavlotskaya und Lavrukhina (1) hatten Sm-141 zwar mit einer 20-Tage-Aktivität identifiziert; diese Zuordnung erscheint aber bei einer systematischen Betrachtung von Halbwertszeiten unglaublich.

Die genannten Radionuklide können durch Kernreaktionen mit Deuteronen oder Alpha-Teilchen hergestellt werden. Zu beachten ist, daß neben diesen auch andere instabile Kernarten entstehen, deren Halbwertszeiten nicht sehr verschieden sein sollten. In nennenswerter Menge treten Isotope dieser Elemente und des Neodyms auf. Die Entfernung der unerwünschten Reaktionsprodukte kann auf chemischem Wege und mit Hilfe eines Massentrenners erfolgen. In dieser Arbeit werden nur chemische Trennungen angewandt. Anstelle von Massentrennungen werden die Zerfallseigenschaften der chemisch nicht abtrennbaren störenden Radionuklide Pm-141 bzw. Sm-142 und 143 ebenfalls untersucht, so daß der von ihnen verursachte Anteil an den Meßwerten bekannt ist. Als Meßgeräte stehen Methan-Durchflußzähler und ein NaJ-Kristall in Verbindung mit einem Vielkanal-Impulshöhenanalysator zur Verfügung.

Eine weitere Schwierigkeit liegt in der Erfüllung der an die chemische Trennung gestellten Forderungen. Sie ergeben sich aus der Erwartung kurzer Halbwertszeiten für die gesuchten Radionuklide und aus der Notwendigkeit, Meßpräparate hoher Aktivität und Reinheit zu bekommen. Danach sollte das erwünschte Lanthanid in wenigen Minuten aus 200-500 µg bestrahlter Targetsubstanz mit einem Trennfaktor $\geq 10^3$ isoliert werden. Da ein diesen Anforderungen genügendes Trennverfahren nicht bekannt ist, muß es entwickelt werden. Die Aufgabe wird durch Elutionschromatographie an Kationenaustauschersäulen gelöst.

2. Schnelle radiochemische Trennung von benachbarten Seltenen Erdmetallen

Es ist ein Merkmal der Seltenen Erdmetalle, in wässrigen Lösungen mit wenigen Ausnahmen nur als 3-wertige Ionen beständig zu sein. Der Radius der Ionen ist sehr ähnlich, bei benachbarten Elementen unterscheidet er sich nur um weniger als 2 %. Diese Tatsachen haben eine weitreichende Übereinstimmung der chemischen Eigenschaften der Lanthanide zur Folge. Die bestehenden Unterschiede bieten jedoch Möglichkeiten, Trennungen der Elemente chemisch durchzuführen. Je geringfügiger der Trenneffekt ist, desto häufiger muß der Prozeß wiederholt werden, um einen vorgegebenen Anreicherungsgrad zu erzielen.

Zur Trennung der Lanthanide werden heute vor allem chromatographische und elektrophoretische Methoden benutzt. Sie stellen eine kontinuierlich ablaufende Folge von Reaktionsschritten derselben Art dar, was den Zeitbedarf begünstigt. Bezogen auf das spezielle Problem haben sie außerdem den Vorteil, zur Trennung unwägbarer Mengen besonders geeignet zu sein (Promethium). Aufgrund des Literaturstudiums wurden zwei Trennverfahren ausgewählt und näher untersucht. Es handelt sich um die von Schumacher (2) angegebene elektrophoretische Ionenfokussierung und um die Elutionschromatographie an Kationenaustauschersäulen.

2.1. Trennung durch elektrophoretische Ionenfokussierung

Zunächst sollen das Geschehen bei der elektrophoretischen Ionenfokussierung (EIF) und ihre qualitativen Voraussetzungen beschrieben werden. Ionen zu trennender Metalle werden auf einen mit Elektrolytlösung getränkten Papierstreifen gebracht und der Elektrophorese unterworfen. Im Elektrophoresemedium befindet sich außerdem ein Komplexbildner, der einen Teil der Kationen in Komplex-Anionen überführt. Da die Konzentration des Komplexbildners in der Wanderungsrichtung der Kationen zunimmt, vergrößert sich die Wahrscheinlichkeit ihrer Umwandlung mit zunehmender Entfernung von der Anode. Die entstehenden Komplex-Anionen wandern in der entgegengesetzten Richtung, bis sie wegen der kleiner gewordenen Komplexbildnerkonzentration wieder dissoziieren. Dies bedeutet, daß die Ionen gegeneinander strömen. Ein solches System stellt bei gleichem Stofftransport in beiden Richtungen ein quasistationäres Gleichgewichtssystem dar. Die Ionen eines Elementes sind darin in einem relativ engen Raum gesammelt. Die Stelle ihrer größten Konzentration nennt man Fokussierungsort.

Der Fokussierungsort zweier in ihren chemischen und physikalischen Eigenschaften ähnlicher Elemente muß voneinander verschieden sein, wenn die Stabilität ihrer anionischen Komplexe unterschiedlich groß ist. Für den Fokussierungsort des Elementes R gilt im einfachsten Fall wegen des gleichen Stofftransports in beiden Richtungen:

$$[R^{a+}] \cdot u_R = [RA_x^{b-}] \cdot u_{RA_x} \quad (1)$$

d.h. sowohl für die Kationen R^{a+} wie für die komplexen Anionen RA_x^{b-} muß das Produkt aus Konzentration und Beweglichkeit (u) gleich groß sein.

Kombiniert man Gleichung 1 mit dem Dissoziationsgleichgewicht (Gleichung 2),

$$K_{RA_x} = \frac{[R^{a+}] [A^{c-}]^x}{[RA_x^{b-}]} \quad (2)$$

so ergibt sich die Komplexbildnerkonzentration am Fokussierungsort des Elementes R zu:

$$[A^{c-}]_R^x = \frac{u_R}{u_{RA_x}} \cdot K_{RA_x} \quad (3)$$

Setzt man bei zwei Elementen Übereinstimmung in der Ligandenanzahl x und im Verhältnis der Ionenbeweglichkeiten voraus, dann unterscheidet sich mit verschiedener Komplexstabilität die Komplexbildnerkonzentration am Fokussierungsort. Ein Komplexbildnergradient führt demnach zu einer unterschiedlichen ortsabhängigen Konzentration der Elemente.

Friedli und Schumacher haben mit Hilfe der EIF auch Seltene Erdmetalle getrennt (3). Sie teilten mit, daß die Gesamtmenge des Trenngutes bis zu 10 mg betragen darf. Die Elektrophoresedauer der von ihnen als Beispiele angegebenen Trennungen lag bei rund 10 Minuten, wobei aus den gleichzeitig abgebildeten Konzentrationsverteilungen eine weitgehende Trennung der Elemente abzulesen ist. Beim Vergleich dieser Werte mit den Angaben über die Leistungsfähigkeit anderer Trennverfahren erschien die EIF für die Lösung der gestellten Aufgaben als besonders gut geeignet.

Zunächst wurden einige der von den genannten Autoren angeführten Experimente wiederholt. Daran schlossen sich Untersuchungen mit dem Ziel an, die das Trennverfahren beeinflussenden Parameter zu ermitteln, Die wichtigsten Ergebnisse dieser Versuche können wie folgt zusammengefaßt werden:

- a) Bei Befolgung der von Friedli und Schumacher beschriebenen Arbeitsweise gelang es, eine Mischung der in unwägbaren Mengen vorliegenden Elemente Ce, Pr, Pm und Y an deutlich unterscheidbaren Orten zu fokussieren. Bei Zusatz von 200 µg Cer zur Probe verschlechterte sich das Analyseergebnis jedoch merklich. Es verkürzten sich die Abstände zwischen den Fokussierungsorten der Elemente, vor allem zwischen denen des trägerhaltigen Cers und des unmittelbar benachbarten Praseodyms. Darstellungen der ortsabhängigen Konzentration der Elemente sind in der Abbildung 1 wiedergegeben.

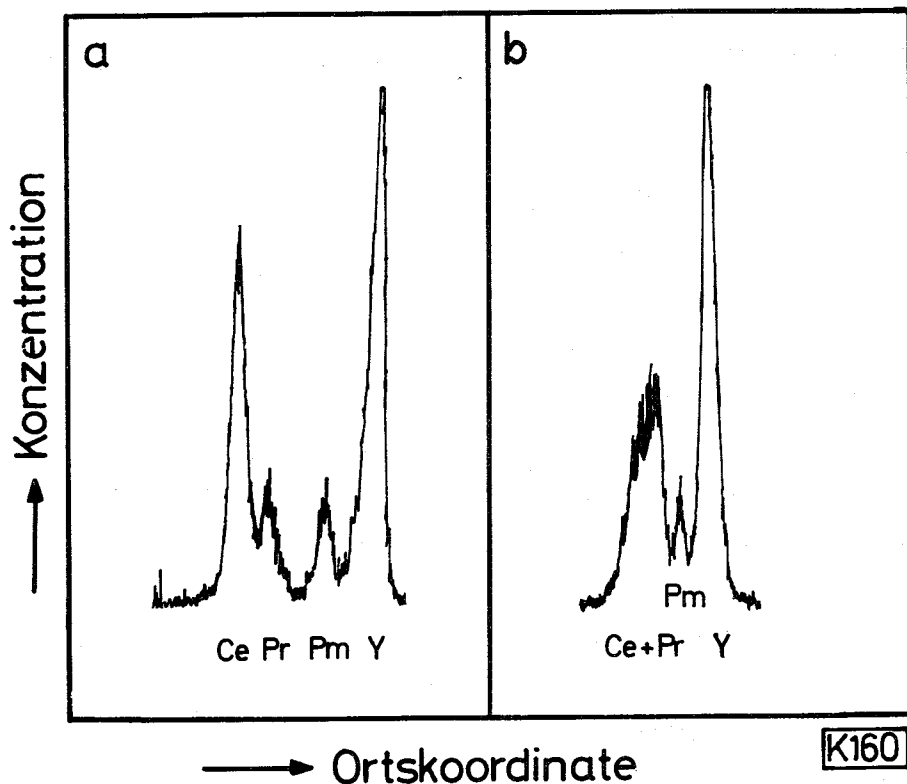


Abb. 1 Ergebnisse von Trennungen der Elemente Ce, Pr, Pm und Y mit Hilfe der EIF

- a) Elemente in unwägbarer Substanzmenge
b) einschließlich 200 µg Cer

b) Der ungenügende Abstand der Fokussierungsorte bei der Trennung von wägbaren Substanzmengen wurde auf die Herstellungsweise des Komplexbildnergradienten zurückgeführt. Man läßt ihn gleichzeitig mit der Elementtrennung durch die im elektrischen Feld gegenläufige Wanderung von Wasserstoff- und Komplexbildner-Ionen entstehen. Es wurde nun versucht, die Komplexbildnerverteilung vor der eigentlichen Trennung auf anderem Wege herzustellen. Das Verfahren bestand darin, das Elektrophoresemedium aus Abschnitten zusammensetzen, in denen die für die Fokussierungsorte der Elemente erforderlichen Komplexbildnerkonzentrationen vorhanden sind. Es entsteht dabei ein angenähert treppenförmiger Konzentrationsverlauf des Komplexbildners, dessen Stufenabstand variierbar ist. Die experimentelle Prüfung des Verhaltens eines so aufgebauten Gradienten ergab jedoch, daß dieser unter dem Einfluß eines elektrischen Feldes wandert. Die Wanderungsgeschwindigkeit der Konzentrationsstufen übertraf sogar die der Lanthanid-Ionen. Damit war die Durchführung einer EIF nach diesem Verfahren nicht möglich.

Die Experimente wurden schließlich abgebrochen, nachdem es auch nach weiteren Untersuchungen nicht gelang, Gemische benachbarter, zum Teil in wägbaren Mengen vorhandener Lanthanide innerhalb weniger Minuten in ausreichendem Umfang voneinander zu trennen.

2.2. Trennung durch Elutionschromatographie an Kationenaustauschersäulen

2.2.1. Einführung und Theorie

Feste Ionenaustauscher bestehen aus einer polymeren Substanz (Matrix), in die Ionen einer Ladungsart fest eingebaut (Festionen) sind. In deren Nähe befinden sich aus Gründen der elektrischen Neutralität auch Ionen der entgegengesetzten Ladungsart (Gegenionen). Im Unterschied zu den Festionen sind die Gegenionen beweglich und somit gegen Ionen gleicher Ladungsart austauschbar. Die zwischen den Festionen und Gegenionen wirkenden Kräfte (Affinität) sind in der Regel für verschiedenartige Gegenionen unterschiedlich groß. Das führt dazu, daß Ionenaustauscher aus einem Gemisch mehrerer Gegenionensorten diese in verschiedener Menge gegen bereits vorhandene austauschen. Dieser Vorgang bedeutet eine An- bzw. Abreicherung und kann als Grundlage eines Trennverfahrens dienen.

Zur schnellen und kontinuierlich ablaufenden Wiederholung der Ionenaustauschprozesse wird das Gegenstromprinzip angewandt. Man läßt dazu eine flüssige Phase (Elutionslösung) durch eine stationäre Packung kornförmigen Ionenaustauschermaterials (Säule) strömen. An einem Ende der Säule aufzugebene Gegenionen werden durch den Transport ihrer in der flüssigen Phase befindlichen Anteile nach und nach alle Abschnitte einer Säule durchwandern und dabei das durch den Transport dauernd gestörte Verteilungsgleichgewicht durch erneuten Austausch wiederherzustellen suchen. Die Wirkung der vielen Einzelreaktionen läßt sich zusammengefaßt durch die Wanderungsgeschwindigkeit der Bande einer Substanz und der darin vorhandenen Konzentrationsverteilung beschreiben.

Die Elutionschromatographie an Ionenaustauschersäulen zeichnet sich dadurch aus, daß die Affinität der Gegenionen der Elutionslösung klein ist gegenüber derjenigen der zu trennenden Substanzen. Wäre sie viel größer, dann würden die Gegenionen der Elutionslösung die anderen in jedem Säulenabschnitt sofort vollständig in die flüssige Phase drängen. Die Substanzen wanderten zwar in der Reihenfolge ihrer Affinität, aber mit gleicher Geschwindigkeit durch die Säule, wobei sich benachbarte Banden stets überlagerten (Verdrängungschromatographie). Ist die Affinität der Gegenionen der Elutionslösung dagegen deutlich kleiner, dann überholen diese die anderen und es resultiert für jede Bande eine eigene Wanderungsgeschwindigkeit. Dabei verringert sich das Ausmaß ihrer Überlagerung mit der Dauer der Elution.

Eine Elution kann formal als eine Anzahl von Reaktionsschritten N verstanden werden. Diese entsprechen dem Durchwandern eines Säulenabschnittes bestimmter Länge; man spricht von einem Boden und seiner Bodenhöhe H . Multipliziert man die Anzahl der Reaktionsschritte mit der Zeitdauer Δt zur Ausführung eines Reaktionsschrittes, dann erhält man den Zeitbedarf t für die Durchführung des Trennverfahrens.

$$t = N \cdot \Delta t \quad (4)$$

N und Δt sind Funktionen mehrerer Parameter. Kennt man die Funktionswerte und trägt deren Produkt gegen die Größe der Parameter auf, dann ergeben sich mit dem Minimum der Kurve die Bedingungen, unter denen eine Trennung in der kürzesten Zeit durchgeführt werden kann.

2.2.1.1. Zahl der Reaktionsschritte

Die Zahl der zur Trennung der Elemente R und S erforderlichen Reaktionsschritte hängt von 3 Faktoren ab. Für sie werden die Begriffe Anreicherungskoeffizient, Trennfaktor und Ausbeute verwandt.

Der Anreicherungskoeffizient $Q_{(R,S)}$ ist ein Maß für die in einem Reaktionsschritt erzielbare Trennung der Elemente. Seine Definition lautet:

$$Q_{(R,S)} \equiv \frac{w_R}{w_S} \quad (5)$$

wobei w_R die Wanderungsgeschwindigkeit der Bande des Elementes R bedeutet und $w_R > w_S$ gilt. Die Wanderungsgeschwindigkeit wiederum hängt von Parametern ab, die in der von Glueckauf (4) gegebenen Beziehung enthalten sind:

$$w_R = \frac{v}{\lambda_R + B} \quad (6)$$

Hierin steht v für die Strömungsgeschwindigkeit der flüssigen Phase, λ für den Verteilungskoeffizienten eines Elementes R mit der Definition

$$\lambda_R \equiv \frac{[R]_{\text{Austauscherphase}}}{[R]_{\text{Flüssigkeitsphase}}} \quad (7)$$

und B für das Volumen der Flüssigkeitsphase, beide bezogen auf das Volumen eines Säulenabschnittes. Der Anreicherungskoeffizient läßt sich nach Einsetzen der Beziehung 6 in die Gleichung 5 dann auch wie folgt ausdrücken:

$$Q_{(R,S)} = \frac{\lambda_S + B}{\lambda_R + B} \quad (8)$$

Der Trennfaktor $T_{(R,S)}$ gibt die vom gesamten Trennverfahren erreichte Trennung der Elemente wieder. Er wird als das Verhältnis der Konzentrationen der Elemente R und S vor und nach Anwendung des Trennverfahrens definiert.

$$T_{(R,S)} \equiv \left(\frac{[R]}{[S]} \right)_{\text{nachher}} \left(\frac{[R]}{[S]} \right)_{\text{vorher}}^{-1} \quad (9)$$

Kennt man die Konzentrationsverteilung der Elemente beim Austritt aus der Ionenaustauschersäule (Elutionskurven), dann kann man den Trennfaktor graphisch ermitteln. Dazu verändert man die Höhe der Elutionskurven gegebenenfalls so, daß beide denselben Flächeninhalt haben und bildet das Verhältnis der sich bis zum gleichen Volumenteil des Eluates erstreckenden Flächen (vgl. Abbildung 2) .

$$T_{(R,S)} = \frac{\Delta R}{\delta S} \quad (10)$$

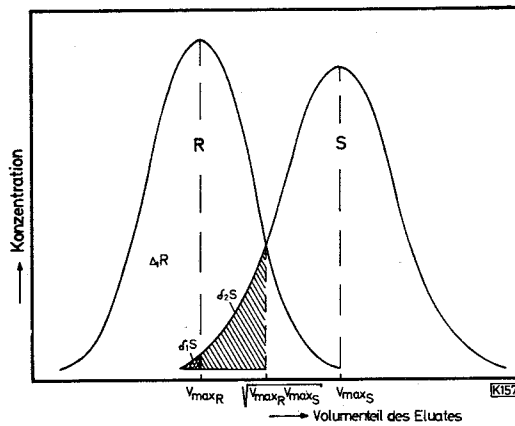


Abb. 2 Normierte Elutionskurven zweier Elemente R und S

Aus der Abbildung 2 ist ersichtlich, daß die Größe des Trennfaktors von der Ausbeute der zu trennenden Substanzen abhängt. Betrachtet man beispielsweise die zuerst die Säule verlassende Hälfte der vorhandenen Menge des Elementes R, so ist der darin enthaltene Anteil des Elementes S kleiner als der in der gesamten Menge des Elementes R vorhandene Anteil.

Die Berechnung der für eine Trennung erforderlichen Anzahl von Reaktionsschritten in Abhängigkeit von dem Anreicherungskoeffizienten, dem Trennfaktor und der Ausbeute, führte nach Glueckauf (4) zu dem in Abbildung 3a und b zusammengefaßten Ergebnis. Vorausgesetzt ist dabei die mit Gleichung 11 gegebene quantitative Beziehung zwischen der Zahl der Reaktionsschritte N, dem zur Elution erforderlichen Lösungsvolumen V und der Konzentrationsverteilung C(V) eines Elementes beim Austritt aus der Säule.

$$C(V) = C_{\max} \exp \left[- \frac{N}{\lambda} \frac{(V_{\max} - V)^2}{V_{\max} \cdot V} \right] \quad (11)$$

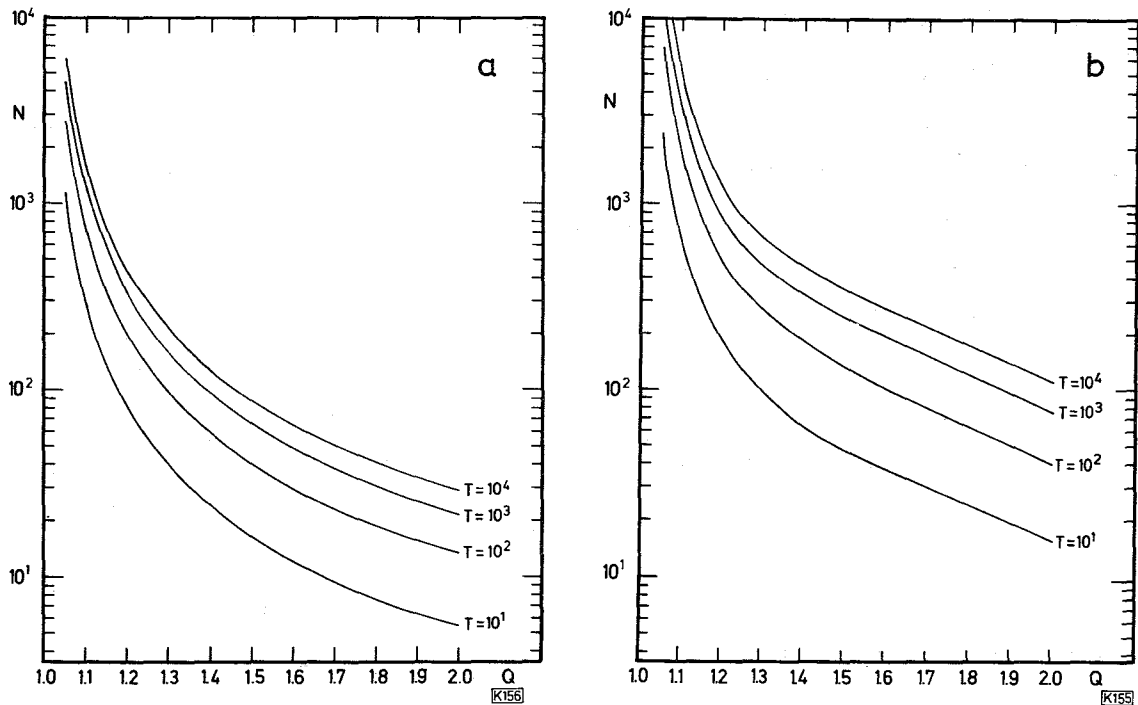


Abb. 3 Erforderliche Anzahl der Reaktionsschritte in Abhängigkeit von Anreicherungskoeffizient Q , Trennfaktor T und Ausbeute:

a = 50 % Ausbeute, Fraktion bis $V = V_{\max_R}$

b = ≥ 90 % Ausbeute, Fraktion bis $V = \sqrt{V_{\max_R} \cdot V_{\max_S}}$

Die Angaben über die Ausbeute beziehen sich auf das die Säule schneller durchwandernde Element (vgl. Abbildung 2).

Geht man davon aus, daß Trennfaktor und Ausbeute einer Trennung vorgegeben sind, dann bleibt zur Beeinflussung der erforderlichen Anzahl der Reaktionsschritte nur die Möglichkeit, den Anreicherungskoeffizienten zu variieren. Dabei führt eine Vergrößerung des Anreicherungskoeffizienten nach Abbildung 3 zur Senkung der Anzahl der Reaktionsschritte. Die Größe des Anreicherungskoeffizienten wächst entsprechend Gleichung 8 mit der Größe des Verhältnisses und der Differenz der Verteilungskoeffizienten der zu trennenden Elemente, wobei B als Konstante betrachtet wird. Will man bei einer Trennung mit möglichst wenigen Reaktionsschritten auskommen, dann muß man also wissen, unter welchen Bedingungen der relative und absolute Unterschied der Verteilungskoeffizienten zweier Elemente am größten ist.

Von den Einflüssen auf den Verteilungskoeffizienten, die von den Eigenschaften der sich verteilenden Substanzen abhängen, sind die Ionenladung und -größe die wichtigsten. Ein Ionenaustauscher bevorzugt das höher geladene und das im solvatisierten Zustand kleinere Ion, es sei denn, das größere Ion ist leichter polarisierbar als das kleinere (5). Je größer die Unterschiede in der Ladung und in der Größe bzw. Polarisierbarkeit der Ionen zweier Elemente, desto verschiedener sind ihre Verteilungskoeffizienten und desto größer ihr Anreicherungskoeffizient. Daraus folgt unter Berücksichtigung der am Anfang dieses Kapitels erwähnten Eigenschaften der Seltenen Erdmetalle, daß sich die dreiwertigen Ionen dieser Elemente gegenüber Kationenaustauschern sehr ähnlich verhalten, ihre Verteilungskoeffizienten also fast gleich groß sind. Das ändert sich, wenn im Reaktionssystem Anionen anwesend sind, die mit den Lanthaniden Komplexe unterschiedlicher Stabilität bilden. Dann existieren neben den dreiwertigen Kationen niedriger geladene Ionensorten, deren Anteile von Element zu Element verschieden sind. Das führt zu kleiner und einander unähnlicher werdenden Verteilungskoeffizienten und insgesamt zu ansteigenden Anreicherungskoeffizienten. Bei sehr hoher Anionenkonzentration werden dagegen alle Kationen in die koordinativ gesättigten Komplexe umgewandelt und damit die Unterschiede in den Eigenschaften der Elemente wieder verringert. Somit muß das Verhältnis der Verteilungskoeffizienten zweier Lanthanide bei einer bestimmten Komplexbildnerkonzentration einen optimalen Wert erreichen. Da dieses Verhältnis außerdem von dem Quotienten ihrer Komplexstabilitätskonstanten abhängt, sollte auch die Art des Komplexbildners von Einfluß sein. Die Gegebenheiten des Reaktionssystems üben ebenfalls einen Einfluß auf die Verteilungskoeffizienten aus. Hier sind vor allem die Volumenkapazität des Ionenaustauschers und die Temperatur zu erwähnen. Mit steigender Volumenkapazität wachsen die Verteilungskoeffizienten zweier Substanzen und damit auch deren Anreicherungskoeffizient. Ob das Verhältnis der Verteilungskoeffizienten beeinflußt wird, ist nicht bekannt. Eine Erhöhung der Temperatur führt in Reaktionssystemen von Seltenen Erdmetallen und einem Komplexbildner ebenfalls zur Vergrößerung der Verteilungskoeffizienten, nicht jedoch zu einer systematischen Veränderung des Wertes für deren Verhältnis (6).

2.2.1.2. Zeitdauer zur Ausführung eines Reaktionsschrittes

Nach der gegebenen Abgrenzung eines Reaktionsschrittes ergibt sich die Zeitdauer zu seiner Ausführung aus dem Verhältnis von Bodenhöhe H und Wanderungsgeschwindigkeit w der Bande einer Substanz

$$\Delta t = \frac{H}{w} \quad (12)$$

Die Bodenhöhe kann nach einer theoretischen Ableitung von Glueckauf (4) durch Gleichung 13 ausgedrückt werden:

$$H = 1,64 r + \frac{\lambda}{(\lambda + \beta)^2} \frac{0,142 r^2 v}{\bar{D}} + \left(\frac{\lambda}{\lambda + \beta} \right)^2 \frac{0,266 r^2 v}{D(1+70 r v)} \quad (13)$$

r = Radius des kugelähnlichen Ionenaustauschermaterials

λ = Verteilungskoeffizient, bezogen auf das Säulenvolumen

β = Volumen der flüssigen Phase, bezogen auf das Säulenvolumen

v = Strömungsgeschwindigkeit der flüssigen Phase

\bar{D}, D = Diffusionskoeffizienten in der Austauscher- bzw. Flüssigkeitsphase

Gleichung 13 wurde unter der Annahme abgeleitet, daß die Konzentration der betrachteten Ionen klein ist verglichen mit der Konzentration der übrigen austauschbaren Ionen. Außerdem wurden die minimale Bodenhöhe dem kleinsten Schichtenabstand der Ionenaustauscherpackung (1,64 r) gleichgesetzt, Zeitgesetze des Austausches vorgegeben und die Longitudinaldiffusion in der Säule vernachlässigt. Nach Einsetzen der Gleichung 6 und 13 ergibt sich für die Zeit Δt :

$$\Delta t = (\lambda + \beta) \frac{1,64 r}{v} + \frac{\lambda}{(\lambda + \beta)} \frac{0,142 r^2}{\bar{D}} + \frac{\lambda^2}{(\lambda + \beta)} \frac{0,266 r^2}{D(1+70 r v)} \quad (14)$$

Danach ist der Zeitbedarf zur Ausführung eines Reaktionsschrittes umso geringer, je kleiner die Korngröße des Ionenaustauschermaterials sowie der Verteilungskoeffizient der betrachteten Substanz und je größer die Strömungsgeschwindigkeit der flüssigen Phase sowie die Werte für die Diffusionskonstanten sind.

2.2.1.3. Schlußfolgerungen

Die Abhängigkeiten der für eine Trennung erforderlichen Zahl von Reaktionsschritten und des Zeitbedarfs zu ihrer Ausführung sind mit der Abbildung 3 bzw. der Gleichung 14 quantitativ beschrieben. Daraus geht hervor, in welcher Richtung die Parameter zu variieren sind, damit N und Δt möglichst kleine Werte erreichen. Dabei ergeben sich für die Größe der Verteilungskoeffizienten entgegengesetzte Tendenzen. Zur Ausarbeitung einer schnellstmöglichen Trennung ist es deshalb erforderlich, den günstigsten Wert dieses Parameters zu ermitteln. Das geschieht in der Weise, daß zunächst die Größen N und Δt der Gleichung 4 nur als Funktionen des Verteilungskoeffizienten bzw. einer davon abhängigen Größe ausgedrückt werden. Dann trägt man das Produkt $N \cdot \Delta t$ gegen die Variable auf. Das Minimum der so erhaltenen Kurve liegt gemäß Gl. 4 bei dem gesuchten Wert des Verteilungskoeffizienten.

Die Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten wurde qualitativ beschrieben. Es ist nicht möglich, die Werte des Parameters aus den bekannten Gegebenheiten des Reaktionssystems zu berechnen. Unbekannt ist auch die Größe der Diffusionskoeffizienten. Für die vorgesehene Optimierung werden aber quantitative Angaben über diese Parameter gebraucht. Daraus folgt die Notwendigkeit, die genannten Größen experimentell zu bestimmen.

Für die meisten Parameter sind die im Hinblick auf eine schnelle Trennung günstigsten Werte praktisch nicht realisierbar. Hier werden von den experimentellen Möglichkeiten Grenzen gesetzt. Die in dieser Arbeit angewandten Bedingungen sind in Abschnitt 4.2.-3. zusammengestellt.

2.2.2. Bestimmung der Größe und Abhängigkeit von Verteilungskoeffizienten

Zur Bestimmung der Verteilungskoeffizienten wurde die aus Gleichung 6 abgeleitete Beziehung 15 herangezogen

$$\lambda = \frac{V}{W} - B = \frac{V_{\max}}{V_s} - B \quad (15)$$

Danach ist es erforderlich, das zur Elution des Maximums der Bande einer Substanz benötigte Elutionslösungsvolumen V_{\max} , das Säulenvolumen V_s und B zu ermitteln. Für B wurde stets ein Wert bei $0,40 \pm 0,02$ gefunden.

Neben der Größe von Verteilungskoeffizienten Seltener Erdmetalle wurde deren Abhängigkeit von der Strömungsgeschwindigkeit der flüssigen Phase, der Komplexbildnerkonzentration und der Komplexbildnerart untersucht. Als Komplexbildner dienten die Anionen der α -Hydroxiisobuttersäure (α -HIB) oder der α -Methyl- α -hydroxibuttersäure (α -MHB) (7).

Die Ergebnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

- a) Die Strömungsgeschwindigkeit der flüssigen Phase wurde zwischen $1 \cdot 10^{-3}$ und $1 \cdot 10^{-1}$ ml/cm²·sec variiert. In diesem Bereich zeigte sich kein Einfluß auf die Verteilungskoeffizienten der Elemente Promethium, Samarium und Europium im Reaktionssystem mit α -HIB als Komplexbildnersäure.
- b) Bei den Untersuchungen über die Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten von der Komplexbildnerkonzentration wurde mit Lösungen unterschiedlicher Molarität und $[H^+]$ -Konzentration gearbeitet. Die Komplexbildnerkonzentration $[A]$ ergibt sich aus der Dissoziationskonstanten K der Säure sowie aus dem jeweiligen pH-Wert und der Molarität $[HA]$ der Lösung nach der Beziehung

$$[A] = \frac{[HA] \cdot K}{[H] + K} \quad (16)$$

Die Dissoziationskonstanten der α -HIB wurden der Arbeit von Smith und Hoffman (8) entnommen, während für α -MHB der aus eigenen Messungen resultierende Wert von $K_{25^\circ C} = 1,12 \cdot 10^{-4} \left[\frac{\text{Mol}}{\text{Liter}} \right]$ der Berechnung zugrunde gelegt wurde. Das Ergebnis der Untersuchungen ist in Abbildung 4 wiedergegeben.

Aus der Abbildung 4 geht hervor, daß die Verteilungskoeffizienten der untersuchten Elemente bei gegebener Komplexbildnerkonzentration unterschiedlich sind. Damit ist die Voraussetzung ihrer Trennbarkeit durch Chromatographie an Kationenaustauschersäulen erfüllt. Die mit steigender Ordnungszahl der Elemente sinkende Größe der Verteilungskoeffizienten bedeutet nach Gleichung 6 eine zunehmende Wanderungsgeschwindigkeit ihrer Banden. Folglich wird bei einer Trennung der Zeitaufwand für das schwerste Lanthanid am geringsten sein.

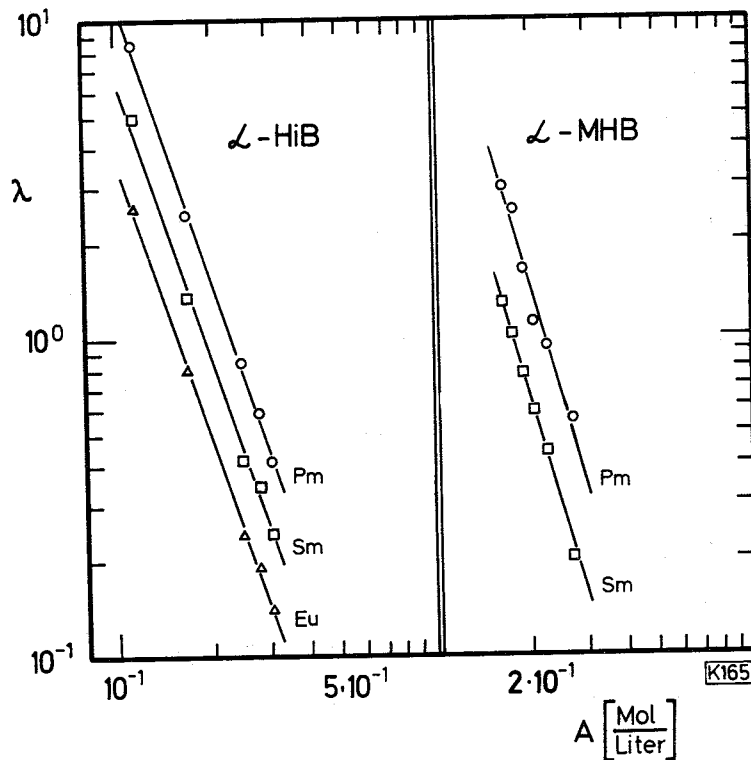


Abb. 4 Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten einiger SE von der Konzentration des Anions (Komplexbildners)
 a) der α -HIB b) der α -MHB

Die in Abbildung 4 dargestellte Abhängigkeit der Verteilungskoeffizienten von der Komplexbildnerkonzentration kann auch durch die allgemeine Gleichung

$$\lambda = k_1 \cdot [A]^{-k_2} \quad (17)$$

ausgedrückt werden. Die für jedes Reaktionssystem spezifischen Konstanten sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

Tabelle 1 Werte für die Konstanten der Gleichung 17

	α -HIB			α -MHB	
	Pm	Sm	Eu	Pm	Sm
k_1	$1,2 \cdot 10^{-2}$	$6,8 \cdot 10^{-3}$	$3,8 \cdot 10^{-3}$	$4,2 \cdot 10^{-3}$	$1,85 \cdot 10^{-3}$
k_2	3,0	3,0	3,0	3,65	3,65

Aus den Zahlen der Tabelle 1 ergibt sich, daß das Verhältnis der Verteilungskoeffizienten zweier Elemente in Reaktionssystemen des gleichen Komplexbildners im untersuchten Konzentrationsbereich konstant ist. Ob der gefundene Wert dem in diesem Reaktionssystem maximal möglichen Verhältnis der Verteilungskoeffizienten entspricht, ist nicht zu erkennen. Betrachtet man die Reaktionssysteme der verschiedenen α -Hydroxibuttersäuren, dann findet man ein unterschiedlich großes Verhältnis der Verteilungskoeffizienten. Für die Elemente Promethium und Samarium beträgt dieser Wert 1,77 bei α -HIB bzw. 2,27 bei α -MHB als Komplexbildnersäure. Das bedeutet: in Reaktionssystemen mit α -MHB ist die für eine Trennung der Elemente Pm und Sm erforderliche Bodenzahl bei gegebenem Absolutwert eines der Verteilungskoeffizienten kleiner als in Systemen mit α -HIB.

2.2.3. Bestimmung von Bodenhöhen und Diffusionskoeffizienten

Zur Ermittlung der Diffusionskoeffizienten D und \bar{D} wurden Bodenhöhen für einige Parameterkombinationen des Reaktionssystems experimentell bestimmt und aus diesen Ergebnissen die Werte der Diffusionskoeffizienten berechnet.

Die Möglichkeit, Bodenhöhen experimentell zu bestimmen, ergibt sich aus der Gleichung 11. Durch Umformen und Einführen der Bandenbreite ξ in der Höhe $\frac{C_{\max}}{e}$ kann schließlich geschrieben werden (4):

$$N = 8 \left(\frac{v_{\max}}{\xi} \right)^2 \quad (18)$$

Nachdem die Anzahl der Böden einer Säule bestimmter Länge L bekannt ist, ergibt sich die Höhe H dieser Böden aus der Beziehung

$$H = \frac{L}{N} \quad (19)$$

Bei den Experimenten zur Bestimmung von Bodenhöhen wurden die Verteilungskoeffizienten und die Strömungsgeschwindigkeit variiert. Als Komplexbildnersäure diente α -HIB; einige spätere Versuche mit α -MHB bei $v = 1 \cdot 10^{-1}$ ml/cm² sec hatten das gleiche Resultat. Eine zusammenfassende Darstellung der Ergebnisse ist in Abbildung 5 wiedergegeben.

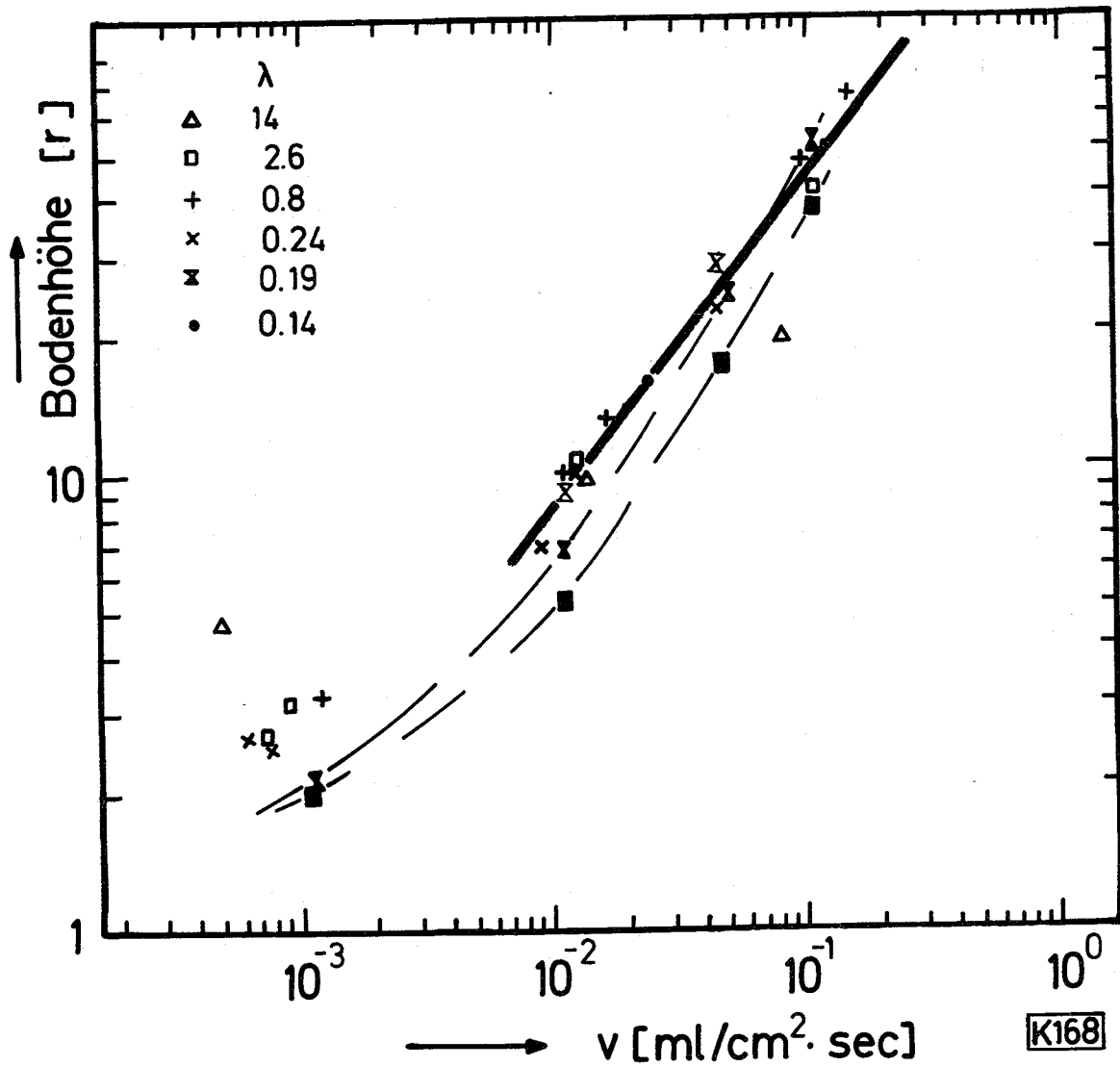


Abb. 5 Bodenhöhen in Abhängigkeit von dem Verteilungskoeffizienten und der Strömungsgeschwindigkeit

- △ □ + × X • = experimentelle Werte
- = Näherung der experimentellen Werte
- X - - - - = berechnete Werte

Die Berechnung der Diffusionskoeffizienten erfolgte nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate. Dabei ergab sich für \bar{D} und D :

$$\bar{D} = 8,93 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{sec} \quad D = 1,02 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{sec}$$

Die experimentellen Werte stimmen mit Angaben über die Größe von Diffusionskoeffizienten gut überein (9). Berechnet man mit ihnen wiederum Bodenhöhen, dann ergeben sich allerdings die in Abbildung 5 ebenfalls wiedergegebenen systematischen Abweichungen von den experimentellen Ergebnissen.

Eine Betrachtung der ermittelten Bodenhöhen zeigt, daß der Einfluß der Strömungsgeschwindigkeit viel größer ist als der des Verteilungskoeffizienten. Daraus ergibt sich für den Bereich, in dem λ Werte zwischen 0,1 und 3 hat und v 10^{-2} bis 10^{-1} ml/cm² sec beträgt, die einfache Möglichkeit, die Bodenhöhe durch den Ausdruck

$$H = 1,14 \cdot v^{0,72} \quad (20)$$

zu beschreiben, was der in Abbildung 5 durchgehend gezeichneten Geraden entspricht und H in cm angibt ($r = 5 \cdot 10^{-3}$ cm). Die Beziehung für Δt (Gleichung 14) vereinfacht sich dann zu

$$\Delta t = \frac{H}{w} = 1,14 \cdot v^{-0,28} (\lambda + \beta) \quad (21)$$

2.2.4. Die optimale Größe der Verteilungskoeffizienten und die Dauer der schnellstmöglichen Trennung

Nachdem alle Voraussetzungen erfüllt sind, kann die Optimierung durchgeführt werden. Von den Faktoren der Optimierungsgleichung (4) wurde bisher die Zahl der Reaktionsschritte N als Funktion des Anreicherungskoeffizienten Q und die Zeitdauer Δt als Funktion des Verteilungskoeffizienten λ angegeben. Die Optimierung kann aber nur für eine beiden Funktionen gemeinsame Variable vorgenommen werden. Der Zusammenhang zwischen Q und λ ist durch Gleichung 8 beschrieben, die allerdings als weitere Variable den Verteilungskoeffizienten des zweiten der zu trennenden Elemente enthält. Für spezielle Berechnungen ist deshalb eine zusätzliche Beziehung zwischen den beiden Verteilungskoeffizienten erforderlich.

In der vorliegenden Arbeit wird der Weg gewählt, die Zeit Δt als eine Funktion von Q auszudrücken. Das bietet den Vorteil, daß der von Glueckauf berechnete Funktionsverlauf der Größe N unverändert übernommen werden kann und die Funktion von der Substitution betroffen wird, deren Funktionswerte ohnehin berechnet werden müssen. Zur Substitution von λ_R durch Q werden Gleichung 8 und das aus den experimentellen Untersuchungen gewonnene Ergebnis

$$\frac{\lambda_S}{\lambda_R} = \text{const.} \quad (22)$$

herangezogen:

$$Q = \frac{\lambda_S + B}{\lambda_R + B} = \frac{\lambda_R \cdot \text{const.} + B}{\lambda_R + B} \quad (23)$$

Durch Umstellen ergibt sich:

$$\lambda_R = \frac{B(Q - 1)}{\text{const.} - Q} \quad (24)$$

Nach Einsetzen der Beziehung 24 in Gleichung 21 lautet der Ausdruck für die Zeit Δt :

$$\Delta t_R = 1,14 \cdot v^{-0,28} \left[\frac{B(Q - 1)}{\text{const.} - Q} + B \right] \quad (25)$$

Die Optimierung erfolgt auf graphischem Wege. Zwei Beispiele dafür werden mit der Abbildung 6 gegeben. Die Werte von Δt gelten für das Element Samarium, α -HIB bzw. α -MHB als Komplexbildnersäure und die Strömungsgeschwindigkeit $1 \cdot 10^{-1}$ ml/cm² sec. Sie beziehen sich auf die Trennung vom Element Promethium. Die Zahl N der Reaktionsschritte führt bei 50 %iger Ausbeute zum Trennfaktor 10^3 .

Aus Abbildung 6 geht hervor:

1. Im Reaktionssystem mit α -HIB bzw. α -MHB als Komplexbildnersäure läßt sich eine Trennung der Elemente Promethium und Samarium am schnellsten erreichen, wenn der Anreicherungskoeffizient 1,45 bzw. 1,82 beträgt. Aus diesem Wert kann mit den Gleichungen 24 und 17 die für den Experimentator interessante Komplexbildnerkonzentration ausgerechnet werden, die zu dem optimalen Anreicherungskoeffizienten bzw. den optimalen Verteilungskoeffizienten führt.
2. Der Zeitaufwand für eine Trennung ist bei Verwendung von α -HIB um den Faktor 2 größer als beim Arbeiten mit α -MHB. Er beträgt der Theorie nach für die Isolierung des (schneller wandernden) Samariums bei einer 50 %igen Ausbeute mit dem Trennfaktor 10^3 150 bzw. 72 Sekunden.

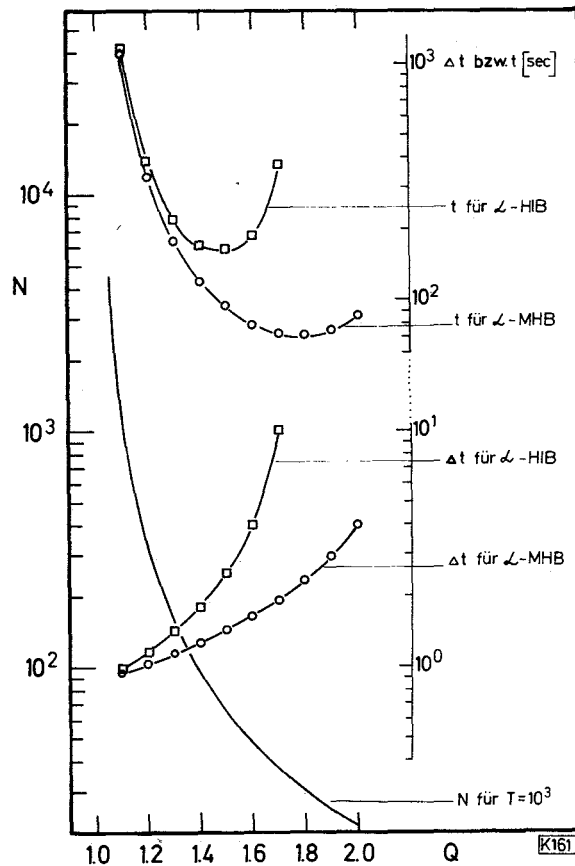


Abb. 6 Graphische Ermittlung der Dauer einer Trennung mit dem Trennfaktor $T = 10^3$ in Abhängigkeit von verschiedenen Anreicherungskoeffizienten Q

Die bessere Eignung von α -MHB gegenüber α -HIB als Komplexbildnersäure zur schnellen Trennung der Elemente Promethium und Samarium veranschaulichen die in Abbildung 7 gezeigten Elutionskurven. Sie geben die bei gleichem Zeitaufwand von 3,5 Minuten erzielbare Trennung unter jeweils optimalen Bedingungen wieder.

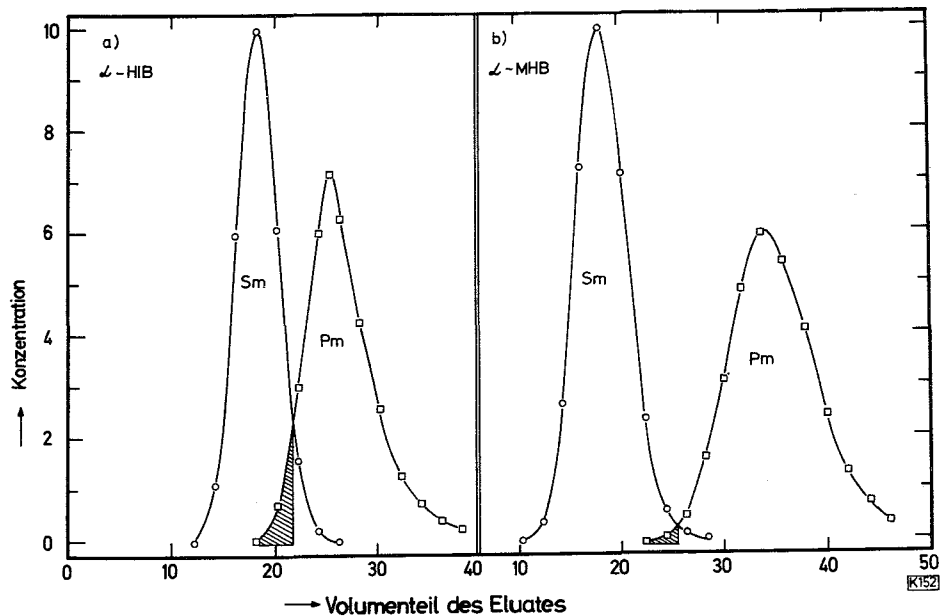


Abb. 7 Trennung von Pm und Sm nach 3,5 Minuten im Reaktionssystem mit a) α -HIB und b) α -MHB als Komplexbildnersäure

Ermittelt man den minimalen Zeitbedarf von zu verschiedenen Trennfaktoren führenden Trennungen und interpoliert zwischen diesen Werten, dann erhält man eine Voraussage über den erforderlichen Zeitbedarf zur Erzielung eines beliebigen Trennfaktors. Ein solches Diagramm wird in Abbildung 8 wiedergegeben. Darin sind außerdem experimentelle Ergebnisse eingetragen. Ein Vergleich zwischen Theorie und Praxis zeigt, daß die tatsächlich aufzuwendende Zeit etwa um den Faktor 1,2 - 1,3 größer ist. Diese Diskrepanz ist wohl zum Teil darauf zurückzuführen, daß die der Berechnung zugrunde liegende Annahme über die Form der Elutionsbanden nicht ganz zu Recht gemacht wird. Glueckauf beschreibt den Konzentrationsverlauf einer Substanz mit einer Normalverteilung, während die experimentell feststellbare Bandenform eher einer Poisson-Verteilung gleicht. Diese ist unsymmetrisch und hat eine relativ breitere Basis, was zu größerer Überlappung einer benachbarten Bande und damit zu einem schlechteren Trennfaktor führt.

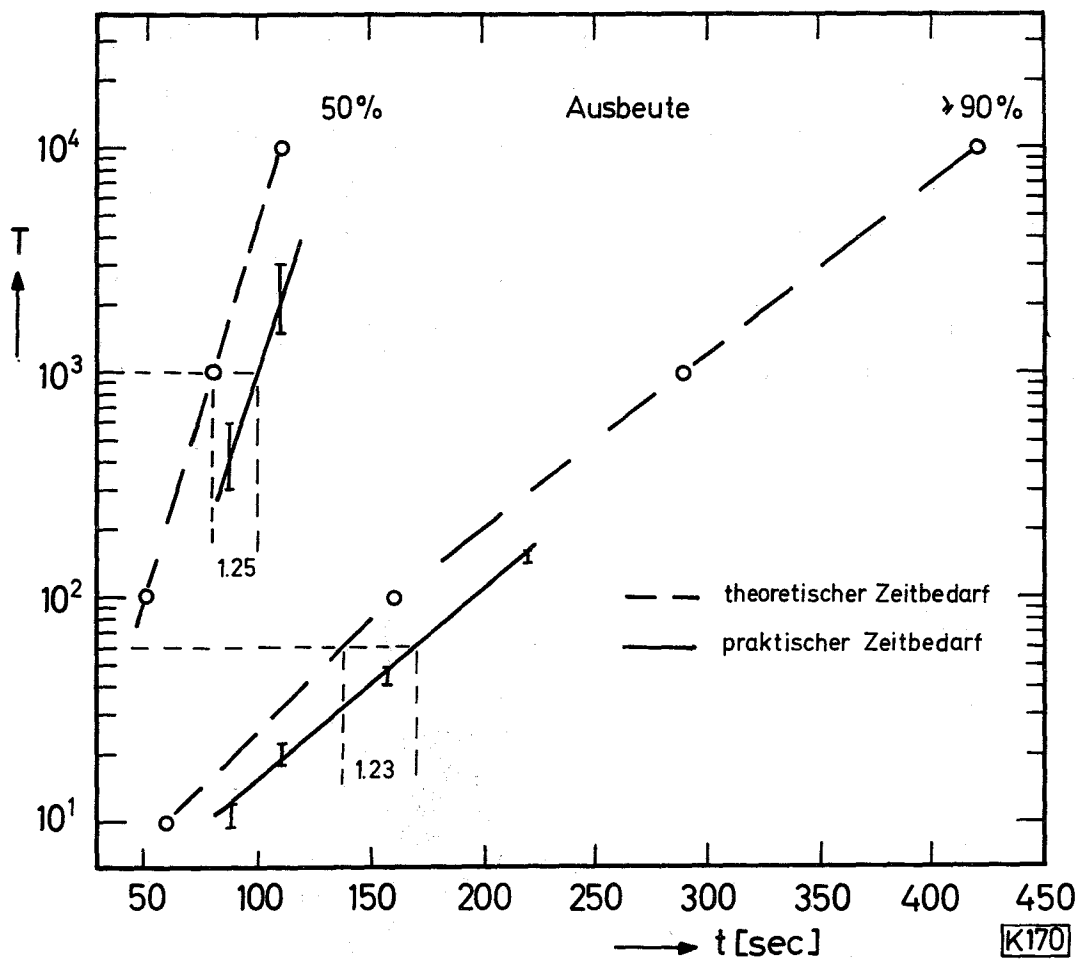


Abb. 8 Vergleich des berechneten und benötigten Zeitaufwandes zum Erreichen eines bestimmten Trennfaktors
 Beispiel: Trennung von Sm/Pm mit α -MHB bei $Q = 1,95$

Die Abbildungen 7 und 8 zeigen, daß die eingangs an das Trennverfahren gestellten Anforderungen erfüllt werden können. Deshalb wurden die Untersuchungen abgeschlossen, obwohl durch Erhöhung der Strömungsgeschwindigkeit und möglicherweise auch der Temperatur noch kürzere Trennzeiten erreichbar sein sollten. Es ist noch zu erwähnen, daß bei Verwendung von Substanzmengen bis 200 μg keine Veränderung der Lage und Form der Elutionskurven beobachtet wurde. Die im zeitlichen Sinne günstigsten Bedingungen zur Trennung anderer Lanthanide lassen sich angeben, sobald eine Funktion zwischen ihren Verteilungskoeffizienten bekannt ist (s. Gleichung 22 und 25).

3. Zerfallsdaten der Radionuklide Pm-139, 140, 141 und Sm-141, 142, 143

3.1. Bildung der Radionuklide

Das entwickelte chemische Trennverfahren gestattet, aus einem Gemisch Sel- tener Erdmetalle dasjenige mit der größten Ordnungszahl in der kürzesten Zeit mit dem höchsten Trennfaktor zu isolieren. Deshalb wurden die Reak- tionspartner zur Erzeugung eines der obengenannten Radionuklide so gewählt, daß das erwünschte Produkt durch einen (d,xn)- bzw. (α ,xn)-Prozeß entstand. Wie an dem in Abbildung 9 gezeigten Ausschnitt der Nuklidkarte (10) zu er- sehen ist, kamen dazu Pr-141 und Nd-142 als Targets substanz in Frage, von denen letzteres ausschließlich benutzt wurde.

				Eu 144 18 m β^+ 2,4	Eu 145 5,6 d K γ 0,89; 0,65; ...	Eu 146 5,1 d K β^+ 1,19; 0,96 γ 0,75; 0,64; ...
		Sm 141 ~ 20 d K β^+ ?	Sm 142 72 m K β^+ 1,03	Sm 143 64 s 8,8 m J: 0,75 K β^+ 2,3	Sm 144 3,09 $\sigma < 2$	Sm 145 340 d K 0,66 kein β^+ γ 0,06; ... e ⁻
			Pm 141 ~ 20 m β^+ ~ 2,6 γ	Pm 142 34 s β^+ 3,78; ... γ ...	Pm 143 265 d K γ 0,74	Pm 144 ~ 400 d K kein β^+ γ 0,62; 0,70; 0,48; ...
		Nd 139? 5,5 h K β^+ 3,1 γ 1,3	Nd 140 3,3 d K γ 0,11-0,5	Nd 141 64 s 2,5 h J: 0,76 K β^+ 0,78 γ 0,04; 0,42; 1,14; ...	Nd 142 27,11 σ 18	Nd 143 12,17 σ 240
Pr 136 70 m K β^+ 2,0 γ 0,17; 0,8; 1,1	Pr 137 1,5 h K β^+ 1,8 kein γ	Pr 138 2,0 h K β^+ 1,4 γ 0,8; 0,30-1,7	Pr 139 4,5 h K β^+ 1,0 γ 1,3; 1,6; ...	Pr 140 3,4 m K β^+ 2,37; ... γ 1,60; 0,90; ...	Pr 141 100 σ 10,8	Pr 142 19,1 h β^- 2,15; 0,58 γ 1,57 σ^* 18
Ce 135 22 h K β^+ ...	Ce 136 0,193 σ 0,6 + 6,3	Ce 137 34,5 h 8,7 h J: 0,255 K kein β^+ e ⁻ γ 0,01; 0,45;	Ce 138 9,2 ms 0,250 J: 0,30; 0,90; 1,04 σ 0,007 - 0,6	Ce 139 60 s 140 d J: 0,75 K 0,10 kein β^+ γ 0,17	Ce 140 88,48 σ 0,31	Ce 141 32,5 d β^- 0,44; 0,58 γ 0,15
La 134 6,5 m K β^+ 2,7; 2,1 γ 0,61	La 135 19,8 h K β^+ ... γ 0,48; ...	La 136 9,5 m K β^+ 1,85; ... γ 0,83	La 137 $6 \cdot 10^4$ a K kein γ	La 138 0,069 $1,1 \cdot 10^{11}$ a K kein β^+ β^- 0,21 γ 1,43; 0,81	La 139 99,911 σ 8,2	La 140 40,2 h β^- 1,38; 1,10; 0,83; ... γ 1,60; 0,49; 0,32; 0,82; ...

N = 82

Abb. 9 Ausschnitt der Nuklidkarte (10)

Wenn keine Isotopentrennung durchgeführt wird, kann es zweckmäßig sein, das zu untersuchende Radionuklid im Vergleich zu seinen Isotopen mit einem großen Anteil zu erzeugen. Die mögliche Höhe des Anteils hängt von der Projektilenergie, der Targetdicke und der Bestrahlungsdauer ab. Der Beitrag der Projektilenergie bzw. der Targetdicke kann nur durch einen Analogieschluß abgeschätzt werden, da die Anregungsfunktionen der ausgewählten Kernreaktionen mit einer Ausnahme (11) nicht bekannt sind. Die Untersuchungen von Vinciguerra et al. (12, Abbildung 10) über die Wirkungsquerschnitte der Au-197(α ,xn)-Reaktionen ergaben, daß die Verhältnisse $\frac{\sigma_x}{\sigma_{x-1}}$ und $\frac{\sigma_x}{\sigma_{x-2}}$ dann am größten sind, wenn σ_{x+1} bereits einen relativ hohen Wert erreicht hat. Bei einer der Reaktionsschwelle der (α , (x+1)n)-Reaktion entsprechenden Projektilenergie dagegen ist der Quotient $\frac{\sigma_x}{\sigma_{x-1}}$ deutlich kleiner. Es wurde angenommen, für die Wirkungsquerschnitte der Reaktionen des Nd-142 mit α -Teilchen bzw. Deuteronen bestünden ähnliche Relationen. Daraufhin richtete sich die Wahl der jeweiligen Projektilenergie danach, ob die größte relative Ausbeute eines Nuklids oder die Beschränkung der Zahl der Reaktionsprodukte für ein bestimmtes Experiment sinnvoller zu sein schien. Meist wurden die Bestrahlungen so durchgeführt, daß das zu untersuchende Nuklid das leichteste der gebildeten Isotope war. In Tabelle 2 sind die Reaktionsschwellen der Kernreaktionen sowie die zu ihrem Eintreten angewandten Projektilenergien zusammengestellt.

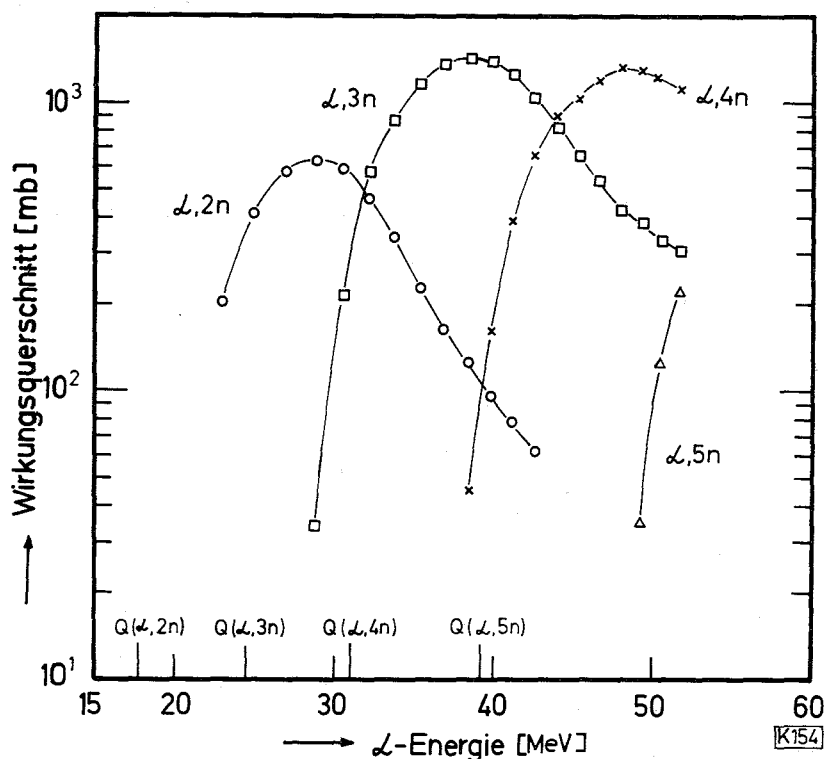


Abb. 10 Anregungsfunktionen von Au-197(α ,xn)-Reaktionen (12)

Tabelle 2 Reaktionsschwellen und Projektilenergien

* berechnet mit den M-A-Werten von Cameron (13)

Kernreaktion	Reaktionsschwelle* [MeV]	angewandte Projektilenergie [MeV]
Nd-142(d,3n)Pm-141	17,6 MeV	25 MeV
Nd-142(d,4n)Pm-140	28,9 MeV	36 MeV
Nd-142(d,5n)Pm-139	38,3 MeV	50 MeV
Nd-142(α,3n)Sm-143	29,0 MeV	38 MeV
Nd-142(α,4n)Sm-142	38,6 MeV	50 MeV
Nd-142(α,5n)Sm-141	50,3 MeV	60,70 MeV
Nd-142(α,6n)Sm-140	60,0 MeV	-----

Die erzeugbare Aktivität läßt sich annähernd voraussagen. Kaplan (11) ermittelte die Anregungsfunktion der Nd-142(α,4n)Sm-142 Reaktion. Ihr Maximum liegt bei 500 mbarn. Die von Lange (14) bestimmten Wirkungsquerschnitte der Reaktion Pr-141(d,3n)Nd-140 erreichen 1000 mbarn. Benutzt man diese Querschnitte, dann entstehen aus 500 µg Nd-142 bei einem Projektilfluß von 2 µA für die Dauer einer Halbwertszeit 35 bzw. 140 µCi. Die gewünschten Radionuklide sollten demnach durch die ausgewählten Reaktionen in genügender Aktivität erzeugbar sein.

3.2. Auswertung der Messungen

Von den erzeugten Radionukliden wurden im Methandurchflußzähler Aktivitätsabfallmessungen durchgeführt und mit einem NaJ(Tl)-Kristall γ-Spektren aufgenommen. Die Auswertung der Aktivitätsabfallmessungen erfolgte nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate mit Hilfe eines elektronischen Rechners IBM 7074 nach dem Programm RADAR3 (15).

Die Analyse der γ-Spektren wurde nach der Subtraktionsmethode (16) durchgeführt. Die Energie der γ-Linien ergab sich durch die logarithmische Differentiation des jeweils höchstenergetischen Photopeaks. Da die untersuchten Radionuklide zu einem erheblichen Anteil durch Positronen-Emission zerfallen, mußte bei der Analyse die Positronen-Vernichtung während des Fluges (annihilation in flight) berücksichtigt werden. Es wurde dabei angenommen, daß der daraus resultierende Untergrund in begrenzten Energiebereichen mit steigender Energie bei logarithmischer Auftragung linear abnimmt (17). In

einem Eingabelungsverfahren wurde die Intensität des Untergrundes solange variiert, bis die sich für die Photopeaks ergebenden Halbwertsbreiten mit dem durch Eichnuklide ermittelten Energieauflösungsvermögen der Meßanordnung übereinstimmte.

Die in den nachfolgenden Tabellen zusammengefaßten Ergebnisse der Analyse von γ -Spektren sind jeweils Mittelwerte der Ergebnisse aus 2 Experimenten. Die angegebenen Fehler stellen die Differenz dieser Mittelwerte von den beiden Ergebnissen dar. Konnten Bereiche eines γ -Spektrums nicht sicher aufgelöst werden, weil der Unterschied der Energie von γ -Linien zu klein war, dann wurde der die γ -Linien enthaltende Energiebereich und die Summe ihrer relativen Intensitäten angegeben.

3.3. Ergebnisse und Diskussion

3.3.1. Pm-141

Pm-141 zerfällt mit einer Halbwertszeit von $20,90 \pm 0,05$ Minuten. Dabei werden Positronen und γ -Strahlen emittiert, deren Energie und relative Häufigkeit in Tabelle 3 zusammengestellt sind.

Tabelle 3 Energie und relative Intensität der beim Zerfall von Pm-141 emittierten γ -Quanten (* Vernichtungsstrahlung)

E_{γ} [MeV]	relative Intensität
0,51*	2500 ± 100
$0,890 \pm 0,005$	58 ± 2
$1,030 \pm 0,005$	17 ± 1
$1,220 \pm 0,005$	100
$1,35 \pm 0,01$	30 ± 3
$1,58 \pm 0,01$	25 ± 3
$1,82 - 1,89$	10 ± 3
$2,01 - 2,07$	20 ± 5

Die Massenzahl der 21-Minuten-Aktivität des Elementes Promethium folgt aus der Nachbildung des Nd-141. Dieses erscheint als eine Komponente der Abfallkurve (errechnete Halbwertszeit $153,0 \pm 0,1$ Minuten). Das γ -Spektrum ist außerdem 200 Minuten nach Bestrahlungsende deutlich zu erkennen.

Kistiakowsky (18) hatte nach einer Bestrahlung von Nd-142 mit Protonen von 20 MeV eine Aktivität mit 20 ± 2 Minuten Halbwertszeit gefunden, die sie mit Pm-141 identifizierte. Später kamen Gratot et al. (19) zu dem gleichen Ergebnis. Sie teilten weiter mit, daß beim Zerfall Positronen, Röntgenstrahlen und γ -Quanten von 195 keV emittiert werden. Die Intensität des γ -Übergangs, bezogen auf die Positronenstrahlung, gaben sie mit 12 % an. Im Gegensatz dazu wurde in dieser Arbeit keine γ -Linie der genannten Energie gefunden (vgl. Tabelle 3). Ihre Existenz ist aber nicht völlig auszuschließen, da deren Nachweis durch die Überlagerung mit der Compton-Verteilung der intensiven Vernichtungsstrahlung erschwert ist. Sicher ist jedoch, daß die von Gratot et al. angegebene relative Intensität des Übergangs mindestens um eine Größenordnung zu hoch ist.

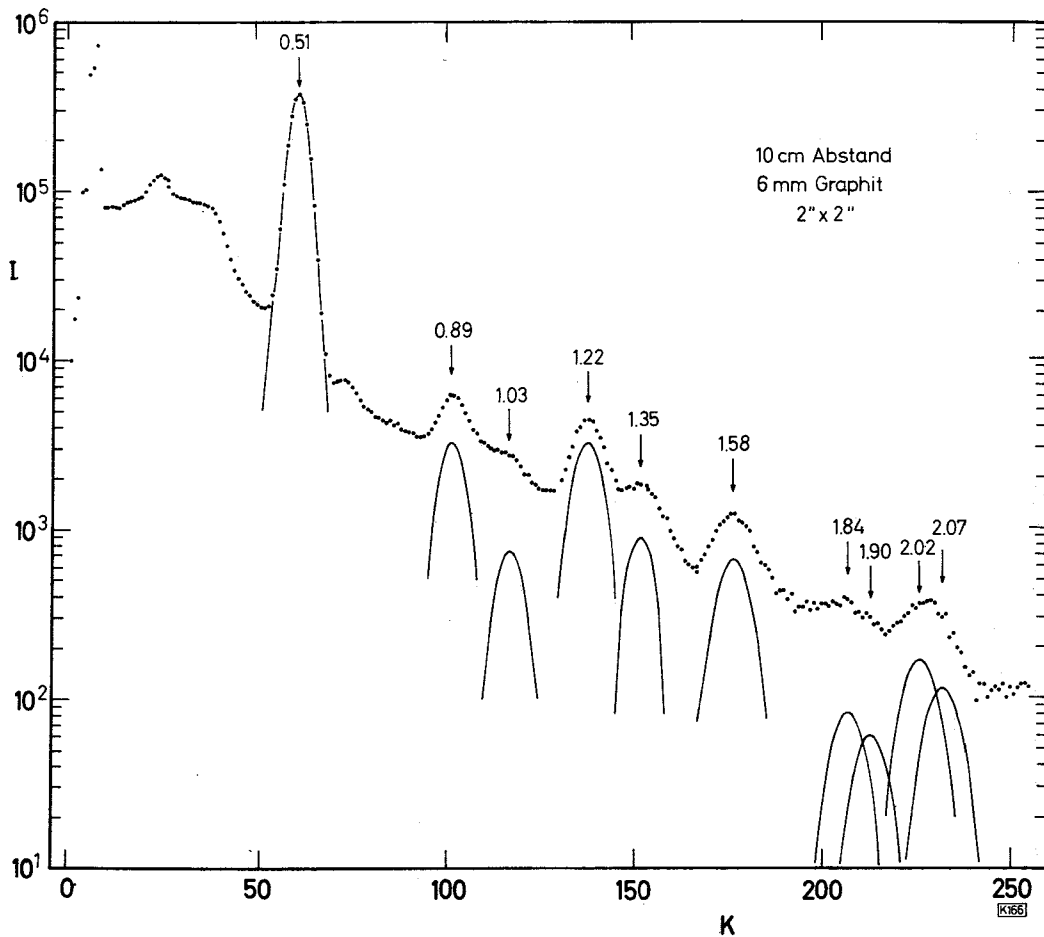


Abb. 11 γ -Spektrum des Pm-141 aufgenommen, 8 - 40 Minuten nach der mittleren Trennzeit (Hälfte der Elutionsdauer); 20 Minuten live time

Nd-141, die Tochter des Pm-141, hat einen längerlebigen (Halbwertszeit 64 Sekunden) angeregten Zustand. Dieser geht ausschließlich in den Grundzustand des gleichen Kerns über, wobei die Anregungsenergie von 760 keV auf einmal abgegeben wird. Im γ -Spektrum des Pm-141 wurde bei 760 keV kein Photopeak gefunden. Das heißt: der Zerfall des Pm-141 erfolgt nicht oder nur mit sehr geringer Häufigkeit über Nd-141m. Dieser Befund entspricht den beim Zerfall der isotonen Kerne Eu-143, Pr-139 und La-137 gemachten Beobachtungen (34), welche zugleich im Einklang mit theoretischen Aussagen stehen. Der metastabile Zustand der Tochterkerne hat den Gesamtspin $\frac{11}{2}^-$, die Grundzustände der Mütter und Töchter $\frac{5}{2}^+$ bzw. $\frac{3}{2}^+$. Damit ist der direkte Übergang in den Grundzustand sehr wahrscheinlich. Aber auch angeregte Niveaus haben Gesamtspin-Werte, die eine häufigere Populierung zulassen als die $\frac{11}{2}^-$ - des metastabilen Zustandes. Qualitative Übereinstimmung des Pm-141 mit den genannten Isotonen besteht auch insofern, als die Häufigkeit der Übergänge in den Grundzustand gegenüber der in angeregte Zustände viel größer ist, die Energie der γ -Quanten meist über 1 MeV liegt und die Halbwertszeit der Tochter um ein Vielfaches länger ist. Die bekannten Daten bieten aber keine ausreichende Grundlage, Vorschläge zum Zerfallsschema des Pm-141 zu machen.

3.3.2. Pm-140

Für Pm-140 wurde eine Halbwertszeit von $5,80 \pm 0,05$ Minuten gefunden. Bei seinem Zerfall treten Positronen und γ -Strahlen auf. Die Energie und relative Häufigkeit der γ -Quanten ist in Tabelle 4c zusammengefaßt.

Tabelle 4 Energie [MeV] und relative Intensität der γ -Strahlung beim Zerfall des a) Nd-140m (20)
 b) Pm-140 (21)
 c) Pm-140m diese Arbeit

a)		b)		c)	
E_γ	rel. Int.	E_γ	rel. Int.	E_γ	rel. Int.
$0,435 \pm 0,02$	wahrsch. Emission als Kaskade	$0,418$	nicht sehr unter- schiedlich	$0,425 \pm 0,005$	90 ± 10
$0,77 \pm 0,02$		$0,51^*$		$0,51^*$	70 ± 15
$1,00 \pm 0,02$		$0,775$		$0,780 \pm 0,005$	90 ± 10
		$1,027$		$1,030 \pm 0,005$	100 ± 10

* Vernichtungsstrahlung

Die Zuordnung des 6-Minuten-Pm-Isotops zur Massenzahl 140 geschieht aus folgenden Gründen:

- a) Entsprechend der berechneten Reaktionsschwelle von 28,9 MeV wurde es bei Bestrahlungen mit Deuteronen von 30 MeV erstmals festgestellt, während dies bei Experimenten mit 25 MeV-Deuteronen nicht möglich war.
- b) Die Analyse der Aktivitätsabfallmessung des Pm-Präparates ergab 4 Halbwertszeiten (vgl. Abbildung 13). Neben 20,9 Minuten und 2,55 Stunden für Pm/Nd-141 und 5,8 Minuten für die neue Komponente wurden 3,38 Tage gefunden, was mit der Halbwertszeit des Nd-140 übereinstimmt.
- c) Remaev et al. (20) entdeckten nach der Bestrahlung von Praseodym mit Protonen eine kurzlebige γ -Strahlung (Halbwertszeit $6 \cdot 10^{-4}$ sec), die sie aufgrund der zugleich bestimmten Anregungsfunktion dem Zerfall eines angeregten Zustandes des Nd-140 zuordneten. Die Energie und Häufigkeit dieser γ -Strahlung stimmt mit der in der 6-Minuten-Aktivität gefundenen überein (vgl. Tabelle 4a,c).

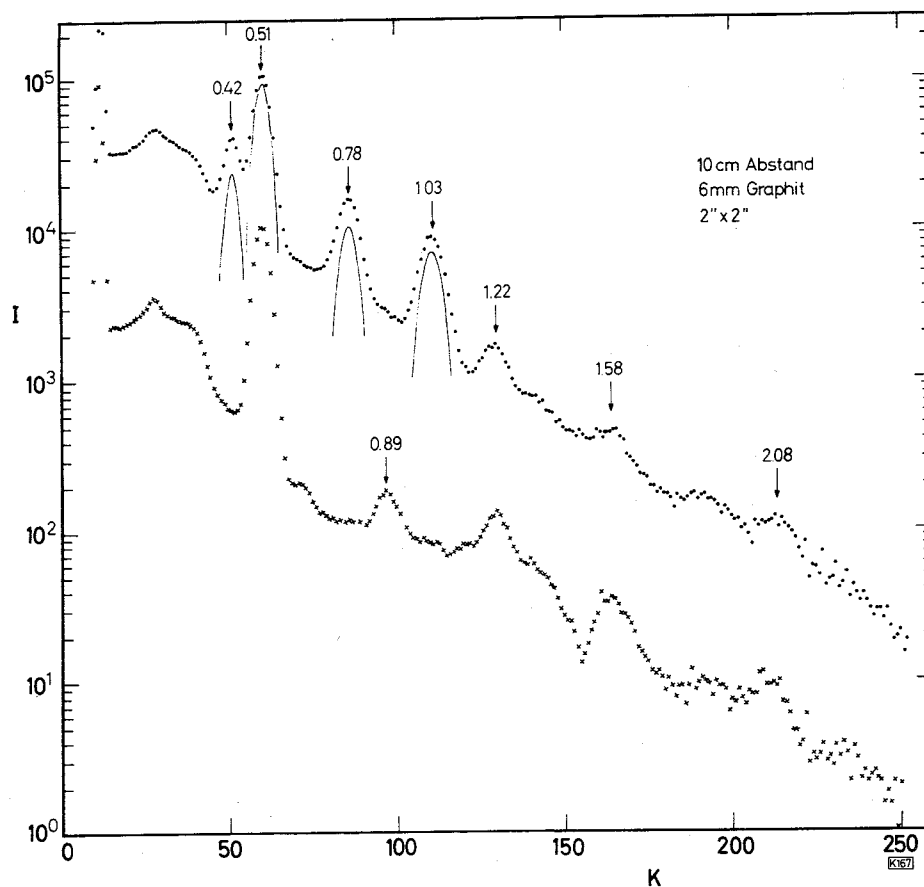


Abb. 12 γ -Spektren der Pm-Fraktion (Pm-140 und 141) aus einem mit Deuteronen von 36 MeV bestrahlten Nd-142-Target, aufgenommen

- 4 - 9 Minuten nach mittlerer Trennzeit (2 min live time)
- xxx 71 - 94 Minuten nach mittlerer Trennzeit
(20 min live time), 1 Dekade tiefer gezeichnet

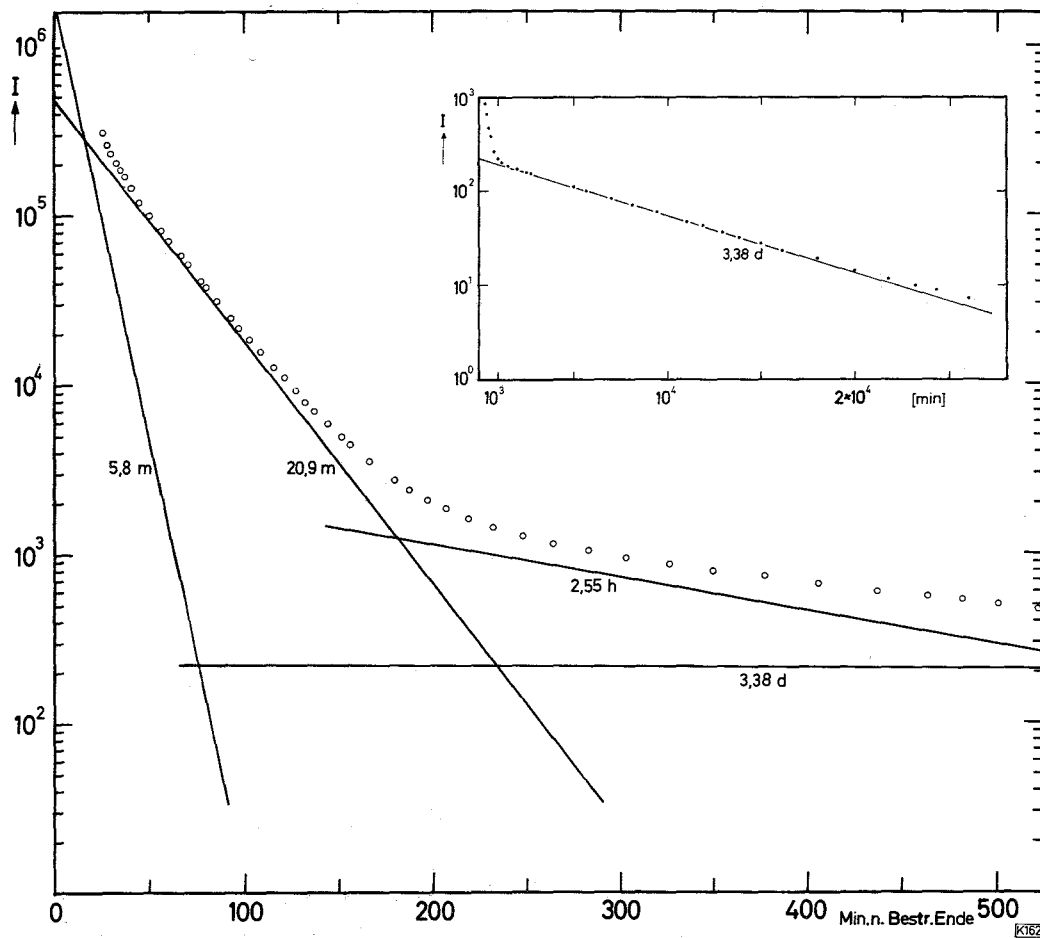


Abb. 13 Aktivitätsabfall der Pm-Fraktion aus einem mit Deuteronen von 36 MeV bestrahlten Nd-142-Target

Interessant ist der Vergleich der Ergebnisse dieser Arbeit mit den Daten über Bildung und Zerfall des isotonen Kerns Pr-138. Gromov et al. (22) stellten fest, daß Pr-138 zwei längerlebige Zustände hat: den Grundzustand mit dem Gesamtspin $1+$ und einer Halbwertszeit von 1,5 Minuten sowie ein 330 keV höher liegendes Niveau mit 2,1 Stunden Halbwertszeit. Deren Zerfall beschreiben die Autoren mit dem in Abbildung 14a wiedergegebenen Schema. Der Zerfall des Pm-140 verläuft über Nd-140m. Dessen Gesamtspin wird mit $7-$ angegeben. In Analogie zum Zerfall des Pr-138 sollte dann der Gesamtspin des Zustandes der Mutteraktivität ebenfalls $6-$, $7-$ oder $8-$ betragen. Damit wird ein erlaubter Übergang postuliert. Ob ein erlaubter Übergang vorliegt, läßt sich nachprüfen, wenn die β^+ -Maximalenergie und

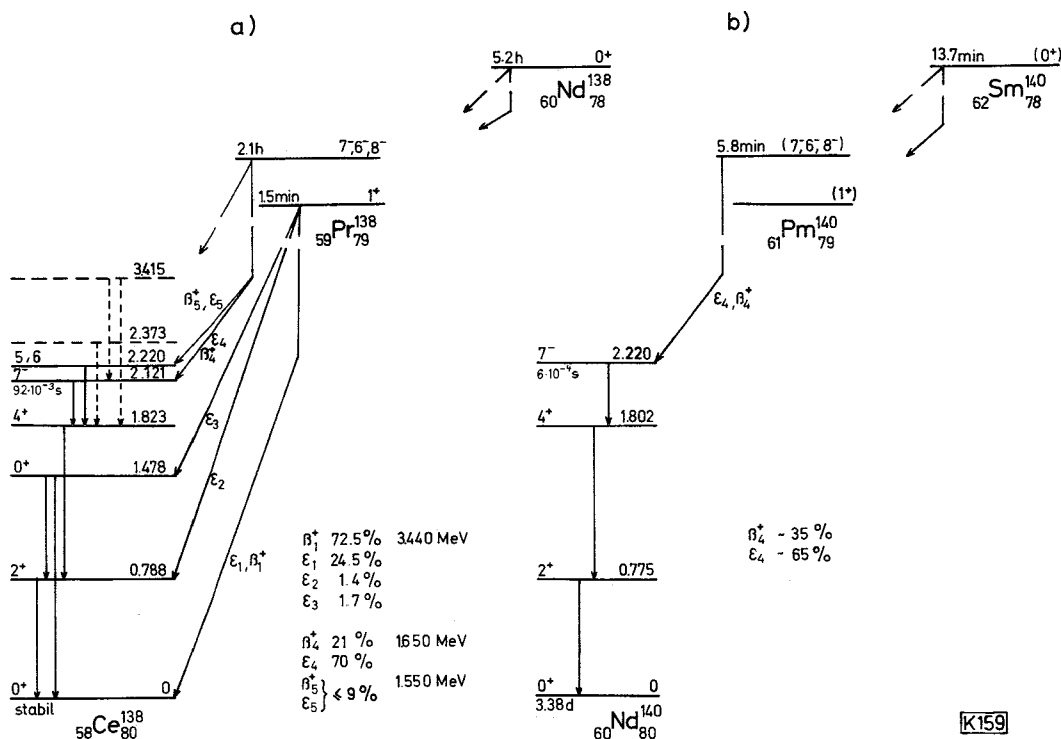


Abb. 14 Vorgeschlagene Zerfallsschemata des Nd-138 (22) und Pm-140

das $\frac{EC}{\beta^+}$ -Verhältnis bekannt sind. Die β^+ -Maximalenergie kann aus dem Q-Wert des Übergangs und der Höhe des Niveaus, zu dem der β -Übergang führt, berechnet werden. Im vorliegenden Fall läßt sich aus den von Everling et al. (23) aufgestellten β -Zerfallsenergie-Tafeln ein Q-Wert von 5,5 bis 6,0 MeV abschätzen. Die Höhe des (7-)-Niveaus ist 2,23 MeV, so daß aus der Differenz eine β^+ -Maximalenergie zwischen 2,25 und 2,75 MeV folgt. Das $\frac{EC}{\beta^+}$ -Verhältnis ergibt sich aus den ermittelten relativen Häufigkeiten (Tabelle 4c). Unter der Annahme, der Zerfall der 6-Minuten-Aktivität erfolgt ausschließlich über das Nd-140m, errechnet sich für $\frac{EC}{\beta^+}$ $2,1 \pm 0,7$, was einer β^+ -Maximalenergie zwischen 1,7 und 2,1 MeV entspricht (24). Da sich die aus den beiden Abschätzungen ergebenden Energiebereiche für die β^+ -Maximalenergie nahezu überlappen, kann die oben gemachte Annahme als gerechtfertigt angesehen werden. Es wird deshalb das in Abbildung 14b gezeigte Zerfallsschema für Pm-140 vorgeschlagen. Der darin postulierte Grundzustand des Pm-140 sollte eine Halbwertszeit von ungefähr 10 Sekunden haben. Das folgt aus dem für einen erlaubten Übergang mit dem Q-Wert von ca. 5,5 MeV angenommenen log ft-Wert 5 (25).

Nach einer Arbeit von Herrmann et al. (26) hat Sm-140, das Isoton des Nd-138, eine Halbwertszeit von $13,7 \pm 0,8$ Minuten. Setzt man diese Zeit in Beziehung zu den 5,8 Minuten des Tochternuklids, dann ergibt sich das gleiche Verhältnis wie aus den Halbwertszeiten der entsprechenden Zustände von Nd-138/Pr-138. In Fortführung dieses Vergleichs folgt für den Grundzustand des Pm-140, welcher beim Zerfall der 14-Minuten-Aktivität des Sm-140 gebildet werden sollte, eine Halbwertszeit von ungefähr 7 Sekunden. Dieser Wert stimmt überraschend gut mit der aus dem $\log ft$ -Wert abgeleiteten Halbwertszeit überein.

Nach Abschluß der vorliegenden Arbeit veröffentlichten Aten jr. und Kapteijn (21) die Ergebnisse ihrer Untersuchung des Pm-140 (Tabelle 4b). Sie konnten mit Hilfe eines Germanium-Halbleiter-Detektors die γ -Energien sehr genau bestimmen; diese Werte wurden auch in das Zerfallsschema Abbildung 14b eingetragen. Als Halbwertszeit ermittelten sie 6 ± 1 Minuten. Die Übereinstimmung mit den Ergebnissen dieser Arbeit ist ausgezeichnet.

3.3.3. Pm-139

Über Pm-139 können noch keine sicheren Angaben gemacht werden. Wahrscheinlich zerfällt es mit einer Halbwertszeit von ungefähr 6 Minuten unter Positronenemission vorzugsweise in den Grundzustand des Nd-139. Diese Schlußfolgerung ergibt sich aus dem Vergleich der γ -Spektren und Abfallskurven für die Pm-Aktivitäten, die bei Bestrahlungen mit 36 bzw. 50-MeV-Deuteronen erzeugt wurden.

- a) Die Analyse des zeitlichen Abfalls des Vernichtungspeaks in den γ -Spektren ergibt stets nur 2 Komponenten mit einer Halbwertszeit von 6 und 21 Minuten. Die Intensität des mit 6 Minuten abfallenden Anteils, bezogen auf die beim Zerfall des Pm-140 ermittelte γ -Linie von 1,03 MeV steigt allerdings von 70 ± 15 (Tabelle 4c) auf 180 ± 20 an. Diese Zunahme beweist die Bildung einer weiteren Pm-Aktivität, die unter Positronenemission mit einer Halbwertszeit von ebenfalls etwa 6 Minuten zerfallen sollte. Da die Schwelle der zu Pm-139 führenden Reaktion bei 38,3 MeV liegt (Tabelle 2), handelt es sich bei der neuen Aktivität wahrscheinlich um dieses Nuklid.
- b) Die γ -Spektren unterscheiden sich nicht in der Zahl der γ -Linien. Daraus folgt, daß Pm-139 vorwiegend direkt in den Grundzustand des Nd-139 zerfällt.

c) Eine Analyse zeigt, daß die Zahl der Komponenten in den β -Abfallskurven, die das Pm-139 enthalten, um mindestens 2 größer ist. Die numerische Auswertung führte bis jetzt nicht zu befriedigenden Ergebnissen, so daß über die Halbwertszeiten der Aktivitäten keine Angaben gemacht werden können.

Die Schlußfolgerung, daß es sich bei der neuen 6-Minuten-Aktivität um Pm-139 handelt, wird außerdem durch den in Tabelle 5 gezeigten Vergleich gestützt. Danach besitzen die Isotone Pr-137 bzw. La-135 und ihre schweren Nachbarisotope ebenfalls ähnliche Halbwertszeiten. Die Nuklide stimmen auch darin überein, daß sie vorwiegend direkt zum Grundzustand des Tochterkerns zerfallen.

Tabelle 5 Eigenschaften des Pm-139 und seiner Isotone Pr-137 und La-135

	Pm-139	Pr-137 (27)	La-135 (28)
Halbwertszeit	~ 6 Minuten	70 Minuten	19,8 Stunden
HWZ des metastabilen Zustandes des schweren Nachbarisotops	5,8 Minuten	126 Minuten	~ 20 Stunden (noch unbestätigt, 29)
Übergang zum Grundzustand	keine } γ -Linien beobachtet	~ 90 %	97,4 %
Zahl der γ -Linien		15	11

3.3.4. Sm-143

Untersucht wurde nur der Zerfall des Grundzustandes von Sm-143. In Tabelle 6 sind die ermittelten Daten sowie die Ergebnisse anderer Autoren zusammengestellt. Ein Vergleich zeigt, daß einige Zerfallseigenschaften neu bzw. genauer ermittelt werden konnten.

Tabelle 6 Kernzerfallsdaten des Sm-143g

Arbeit	Halbwertszeit Minuten	Zerfalls- art	γ -Energie (rel. Häufigkeit) [MeV]
Mirnik und Aten Jr. (30)	8,3	β^+	keine γ -Emission mit $E_\gamma > 0,15$
Gratot et al. (19)	8,6 \pm 0,1	β^+ , EC	keine γ -Emission
Kotajima und Morinaga (31)	8,8 \pm 0,2	β^+ , EC	1,05
Malan, Münzel und Pfennig (32)	8,84 \pm 0,02	β^+ , EC	1,05 1,52
diese Arbeit	8,83 \pm 0,01	β^+ , EC	0,51* (4400 \pm 100) 1,050 \pm 0,005 (100) 1,160 \pm 0,005 (12 \pm 1) 1,21 \pm 0,01 (6,5 \pm 1) 1,39 \pm 0,01 (14 \pm 1) 1,50 \pm 0,01 (36 \pm 2)

* β^+ -Vernichtungsstrahlung

Bei der Betrachtung der beim Zerfall des Sm-143 emittierten γ -Linien fällt auf, daß ihre Energie stets größer als 1 MeV ist. Dagegen wurde beim Zerfall der Isotone Nd-141 und Ce-139 (neben γ -Quanten ähnlich hoher Energie) ein Übergang im Bereich von 150 keV gefunden (33, 34). Dieser wird auf den Sprung des ungepaarten Protons vom ($\frac{7}{2}^+$)- zum ($\frac{5}{2}^+$)-Zustand bzw. umgekehrt zurückgeführt. Ein Vergleich der Energiedifferenz der genannten Zustände bei einer größeren Zahl von ug-Kernen, deren Aufbau dem des Pm-143 ähnlich ist, zeigt Regelmäßigkeiten auf (Abbildung 16a). Leitet man daraus die Berechtigung zur Abschätzung weiterer Werte ab und nimmt diese durch lineare Extrapolation vor, dann ergibt sich für Pm-143 (N = 82) etwa -450 keV. Eine γ -Linie dieser Energie konnte jedoch nicht gefunden werden. Ihr Nachweis ist aber wegen der besonders intensiven β^+ -Vernichtungsstrahlung schwierig (vgl. Abbildung 15). Im gegebenen Spektrum besteht die größte Nachweiswahrscheinlichkeit eines γ -Übergangs <550 keV bei der Energie der Talsohle (420 keV) zwischen dem Vernichtungspeak und seiner Compton-Verteilung. Um mit der benutzten Meßapparatur eine solche Linie festzustellen, hätte ihre relative Häufigkeit, bezogen auf die intensivste γ -Linie, 50 % betragen müssen.

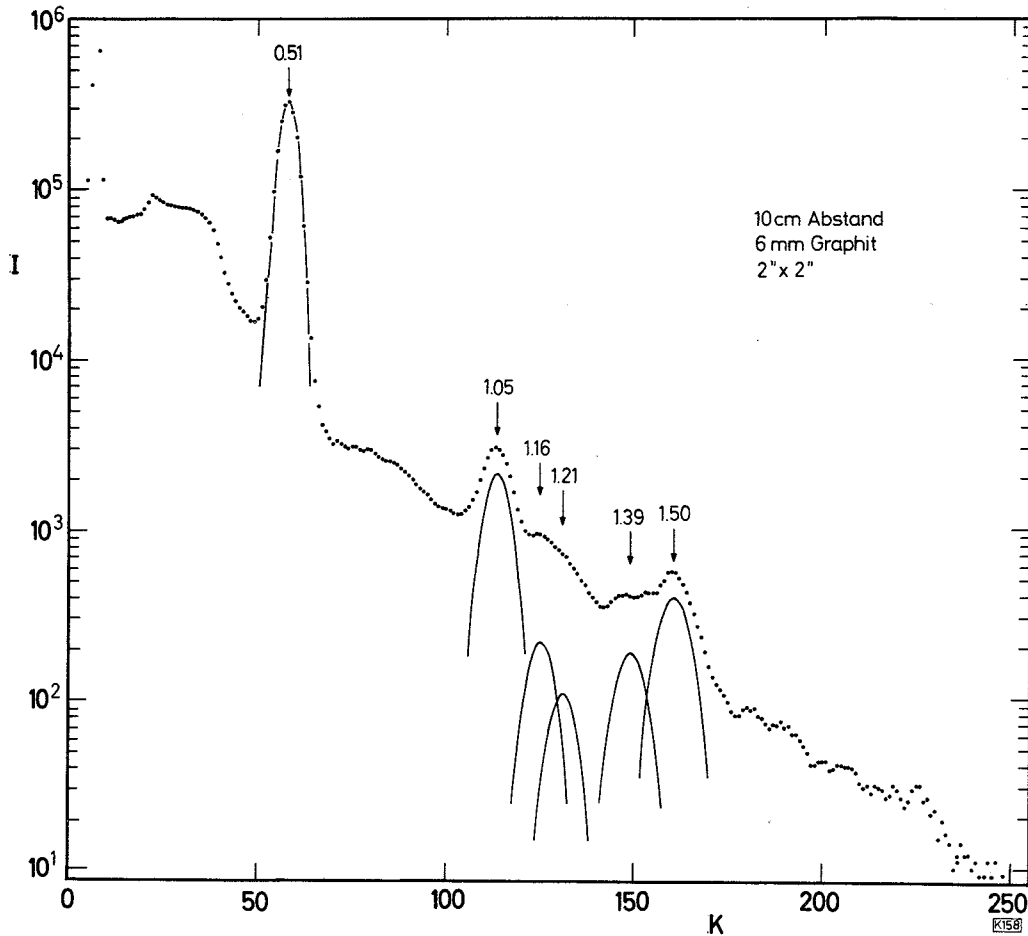


Abb. 15 γ -Spektrum des Sm-143g, aufgenommen 7 - 33 Minuten nach mittlerer Trennzeit (16 min live time)

Erweitert man den Vergleich von Energiedifferenzen auf die Zustände $(\frac{3}{2}^+)$ und $(\frac{5}{2}^+)$ (Abbildung 16b), dann sind auch hier Regelmäßigkeiten zu erkennen. Eine wiederum lineare Extrapolation führt zu der Abschätzung, daß im Pm-143 das $(\frac{3}{2}^+)$ -Niveau etwa 1 MeV über dem $(\frac{5}{2}^+)$ -Zustand liegt. Nach dem Schalenmodell sollte der Grundzustand den Gesamtspin $(\frac{5}{2}^+)$ haben, womit dem $(\frac{3}{2}^+)$ -Niveau die absolute Höhe von ungefähr 1 MeV zukäme. γ -Quanten dieser Energie (1,05 MeV) werden beim Zerfall des Sm-143 tatsächlich emittiert, sogar mit der größten Häufigkeit. Das steht im Einklang damit, daß der zerfallende Grundzustand im Mutterkern ebenfalls den Gesamtspin $(\frac{3}{2}^+)$ hat.

Wie in dem vorgeschlagenen Zerfallsschema (Abbildung 17) angedeutet, werden für die Einordnung der übrigen γ -Linien keine Anhaltspunkte gesehen.

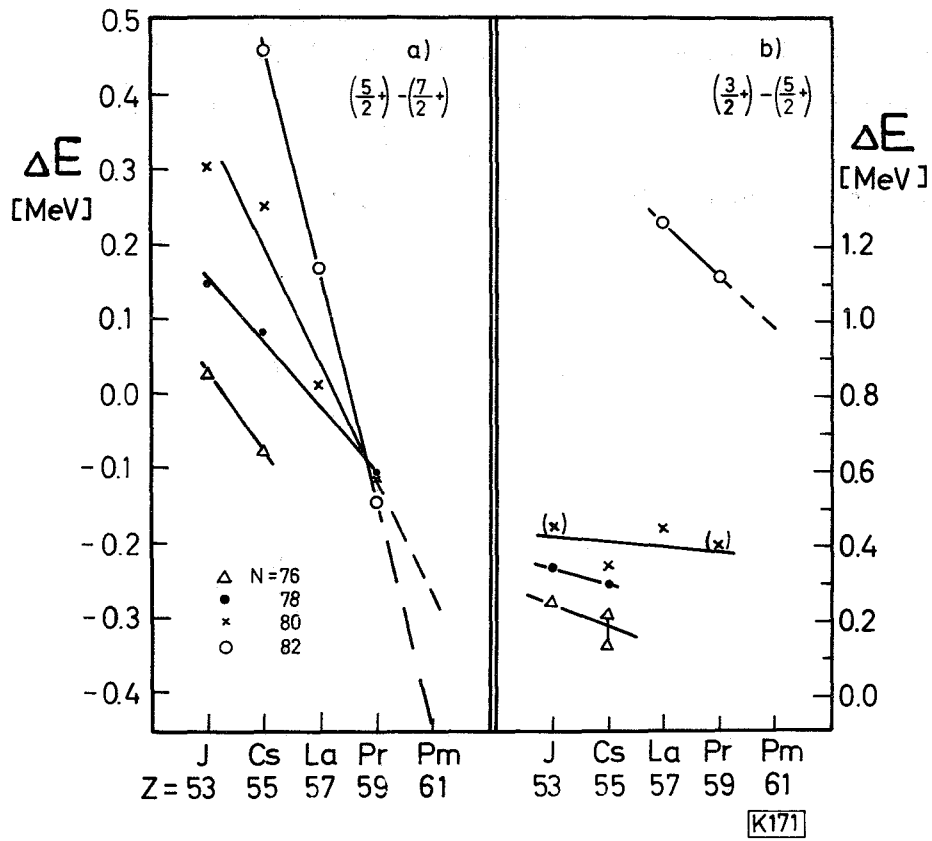


Abb. 16 Energiedifferenz von Zuständen in ug-Kernen (33 - 40) eingeklammerte Werte unsicher

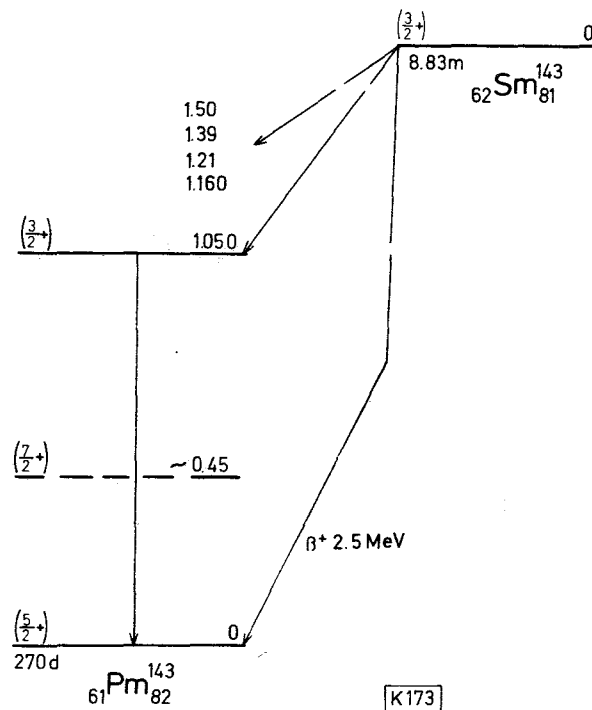


Abb. 17 Vorschlag für das Zerfallsschema des $\text{Sm-}^{143}\text{g}$

3.3.5. Sm-142

Sm-142 zerfällt mit einer Halbwertszeit von $72,4 \pm 0,1$ Minuten. Im Zusammenhang damit werden γ -Quanten der Energie (bzw. relativen Häufigkeit) $0,64 \pm 0,01$ (20 ± 10) und $1,570 \pm 0,005$ (100) MeV emittiert. Die relative Intensität der β^+ -Vernichtungsstrahlung beträgt $5\,900 \pm 200$.

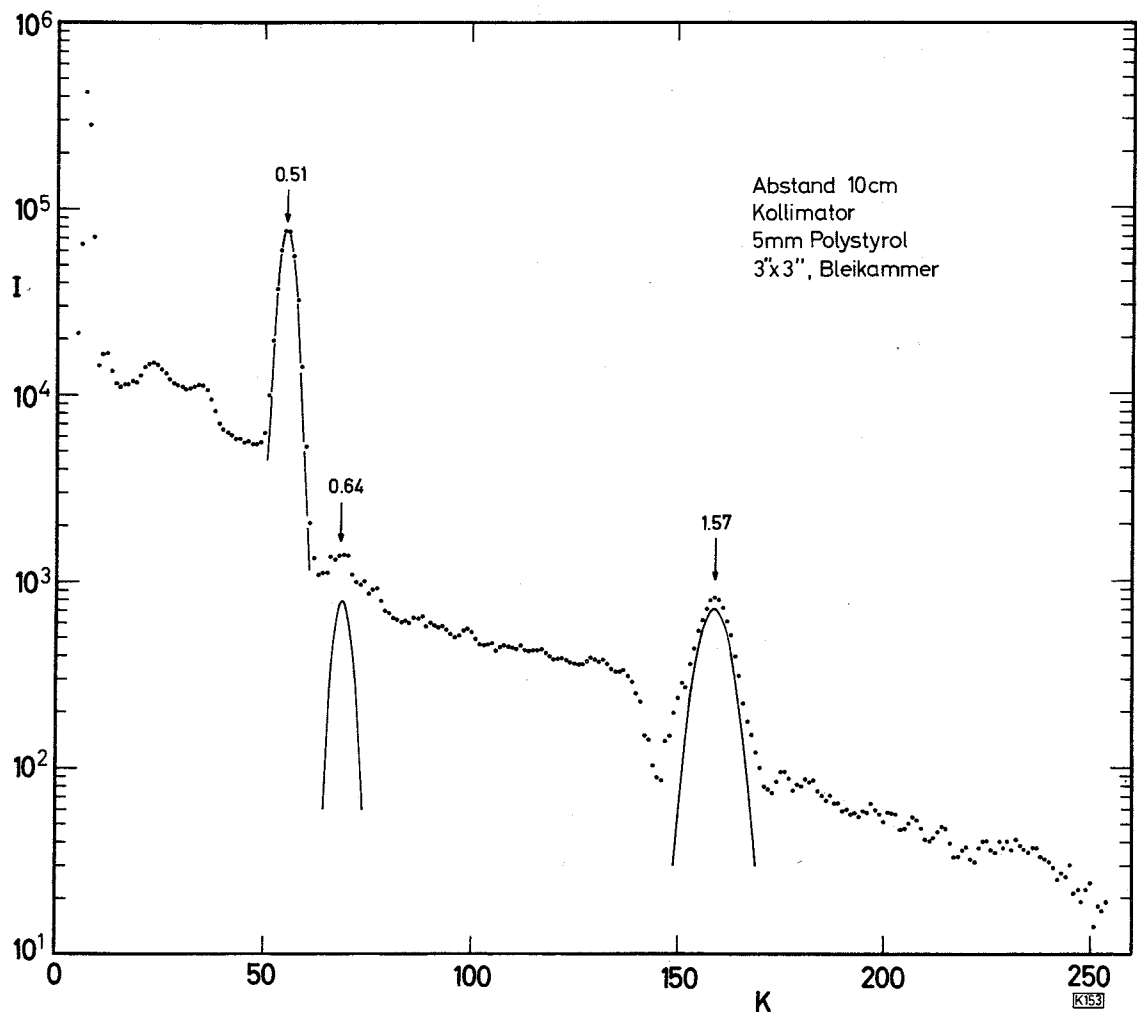


Abb. 18 γ -Spektrum der Zerfallsreihe Sm-142/Pm-142, aufgenommen
80 - 140 Minuten nach Bestrahlungsende
(60 min live time)

Marshall (41) stellte fest, daß der γ -Übergang von 1,57 MeV beim Zerfall der mit 34 Sekunden abfallenden Tochter Pm-142 auftritt. Die neu gefundene zweite γ -Linie wird aufgrund der von Christensen und Yang (42) ermittelten Höhe von angeregten Zuständen im Enkelnuklid Nd-142 gleichfalls der Tochter zugeschrieben (Abbildung 19). Die Autoren fanden neben dem schon bekannten Niveau bei 1,58 MeV (Gesamtspin 2+) ein weiteres bei 2,21 MeV (0+). Da der Grundzustand des Pm-142 den Gesamtspin (1+) hat und etwa 4,8 MeV über dem des Nd-142 liegt, ist eine Populierung auch des angeregten (0+)-Niveaus gut denkbar. Dieses wiederum könnte unter Emission eines γ -Quants von 0,63 MeV zum (2+)-Niveau oder durch Emission von Konversionselektronen zum Grundzustand (ebenfalls 0+) zerfallen. Die Energie der gefundenen γ -Linie stimmt mit dem geforderten Betrag überein. Für die Richtigkeit der Zuordnung spricht außerdem, daß beim Zerfall des Isotons Pr-140 Übergänge derselben Spinfolge auftreten und für deren relative Intensität ähnliche Werte ermittelt wurden (43).

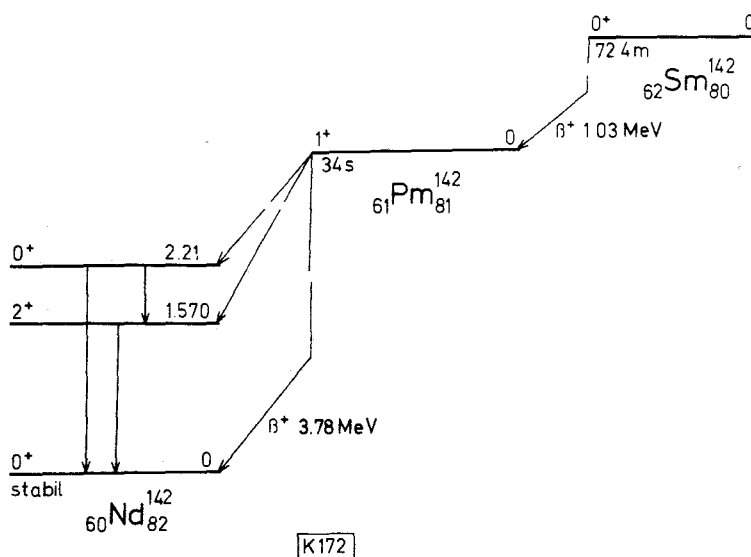


Abb. 19 Vorschlag für das Zerfallsschema Sm/Pm-142

3.3.6. Sm-141

Für dieses Nuklid wurde eine Halbwertszeit von $23,5 \pm 0,5$ Minuten gefunden. Die Analyse von γ -Spektren ergab die in Tabelle 7 zusammengestellte Energie und relative Häufigkeit von γ -Linien. Aus der geringen Intensität der β^+ -Vernichtungsstrahlung kann gefolgert werden, daß der Zerfall vorwiegend durch Elektroneneinfang geschehen dürfte.

Tabelle 7 Energie und relative Häufigkeit der beim Zerfall des Sm-141m emittierten γ -Quanten (* β^+ -Vernichtungsstrahlung)

E_γ [MeV]	relative Intensität
$0,195 \pm 0,005$	100
$0,430 \pm 0,005$	38 ± 2
$0,51^*$	130 ± 10 (einschl. Tochter)
$0,780 \pm 0,005$	38 ± 5
$0,85 \pm 0,02$	15 ± 3
$0,92 \pm 0,02$	18 ± 2
$1,00 \pm 0,02$	17 ± 3
$1,05 \pm 0,02$	7 ± 2
$1,14 \pm 0,01$	11 ± 1
$1,480 \pm 0,005$	17 ± 3
$1,62 \pm 0,01$	6 ± 2
$1,77 \pm 0,01$	13 ± 2

Für die Zuordnung der 24-Minuten-Aktivität des Samariums zur Massenzahl 141 gibt es folgende Gründe:

- a) Die Aktivität wurde erst dann beobachtet, wenn die Energie der α -Teilchen größer als die Schwelle der zu Sm-141 führenden Reaktion und zugleich niedriger als die der $(\alpha,6n)$ -Reaktion war.
- b) Beim Zerfall treten γ -Quanten auf, die auch von einem angeregten Zustand des erwarteten Tochterkerns Pm-141 emittiert werden. Es handelt sich um das von Remaev et al. (20) entdeckte Niveau mit 2,2 m sec Halbwertszeit und um die γ -Übergänge von 195 und 430 keV.

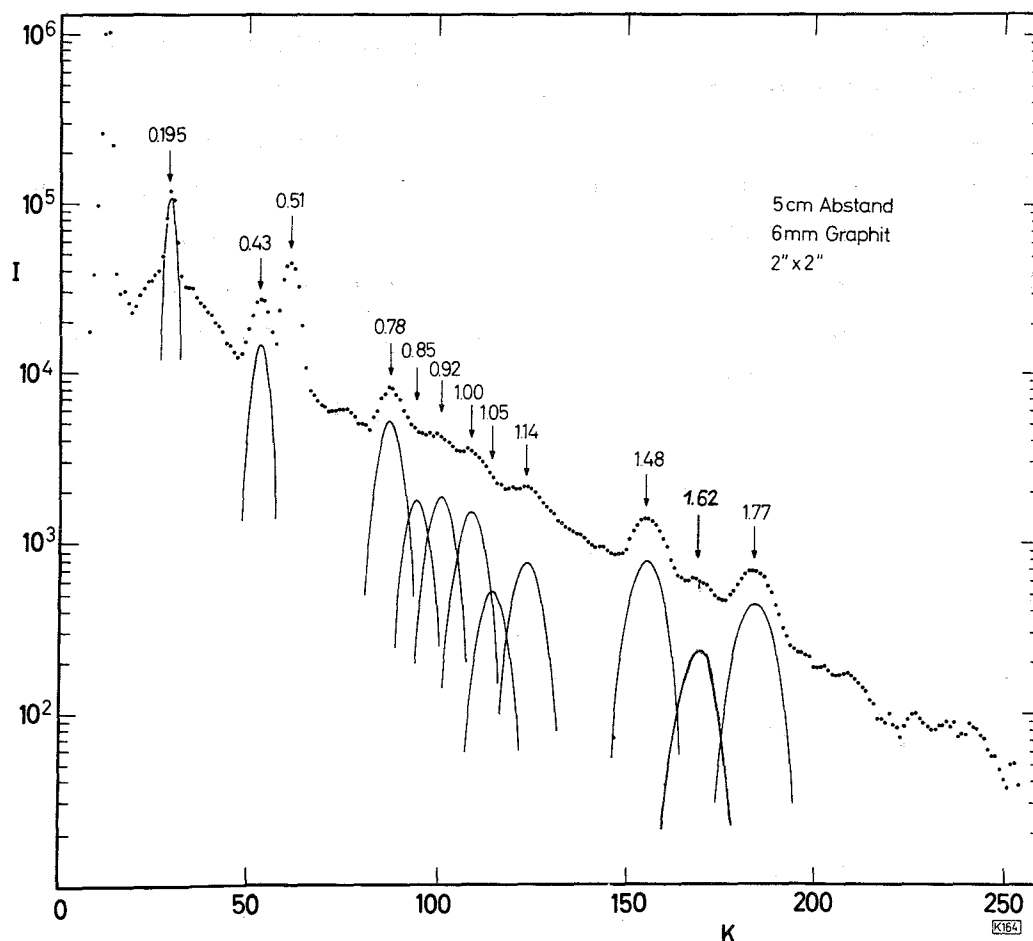


Abb. 20 γ -Spektrum des Sm-141m, aufgenommen 4,5 - 35 Minuten nach der mittleren Trennzeit (18 min live time)
 Der ursprünglich im Spektrum enthaltene Anteil des Sm-142 und 143 wurde abgezogen (Anpassung bei 1,57 MeV).

Die Einordnung der gefundenen γ -Linien in ein Zerfallsschema kann nur unvollständig vorgeschlagen werden (Abbildung 21). Der Grundzustand des Pm-141 sollte nach dem Schalenmodell und in Übereinstimmung mit ähnlichen Kernen den Gesamtspin ($\frac{5}{2}^+$) haben. Weiter müßte bei dem wahrscheinlich über eine Kaskade erfolgenden isomeren Zerfall des Pm-141m der 430 keV-Übergang der erste sein, da er nach Remaev zum M3-Typ gehört und mit der gefundenen Halbwertszeit im Einklang steht. Bei der zweiten Stufe kann es sich aufgrund der kürzeren Halbwertszeit nur um einen einfachen Übergang handeln. Nach der Betrachtung ähnlicher Kerne liegt es nahe, den M1-Typ vorzuschlagen bzw. dem 195 keV-Niveau den Gesamtspin ($\frac{7}{2}^+$) zuzuordnen. In Übereinstimmung damit steht die aus Abbildung 16a folgende Abschätzung

von -250 keV für die Differenz $(\frac{5}{2}^+) - (\frac{7}{2}^+)$ im Pm-141. Der Gesamtspin des um 450 keV höher liegenden Niveaus muß aufgrund des M3-Übergangs (Änderung des Gesamtspins um 3 Einheiten, kein Paritätswechsel) $(\frac{1}{2}^+)$ oder $(\frac{13}{2}^+)$ betragen. Der erste Wert ist aber damit unvereinbar, daß dann ein Übergang zum Grundzustand wahrscheinlicher als zum $(\frac{7}{2}^+)$ -Niveau wäre, eine γ -Linie von 625 keV aber nicht gefunden wurde. Deshalb wird dem metastabilen Zustand der Gesamtspin $(\frac{13}{2}^+)$ zugeschrieben, was keine Widersprüche mit sich bringt.

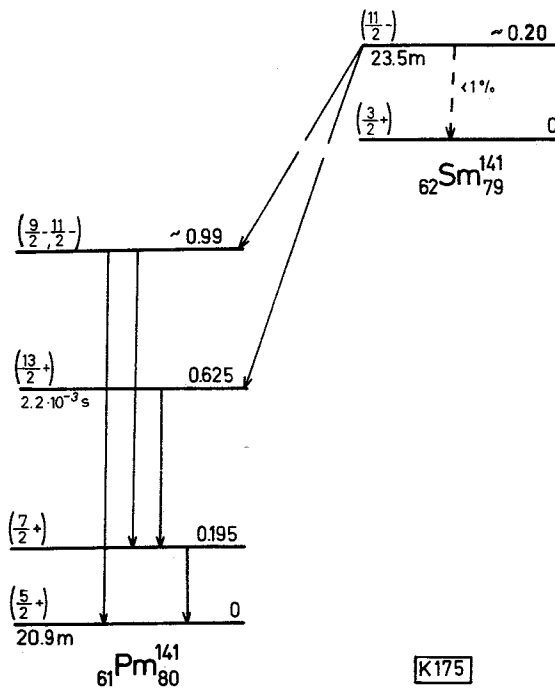


Abb. 21 Vorschlag zum Zerfallsschema des Sm-141m

Die hohe relative Intensität der 430 keV-Linie legt die Vermutung nahe, daß das $(\frac{13}{2}^+)$ -Niveau mindestens teilweise durch einen direkten Übergang vom Mutternuklid populiert wird. Wie später erläutert werden soll, kann der mit 24 Minuten Halbwertszeit abfallende Zustand den Gesamtspin $(\frac{3}{2}^+)$ oder $(\frac{11}{2}^-)$ haben. Der höhere Spin wird der zutreffende sein, wenn die vorher genannte Vermutung zu Recht besteht. Daraus ergibt sich als weitere Hilfe zur Einordnung der γ -Linien, Vergleiche mit dem Zerfallsschema des $(\frac{11}{2}^-)$ -Zustandes des isotonen Kerns Nd-139 (Halbwertszeit 5,5 Stunden) anzustellen. Dort wird bei 810 keV wiederum ein $(\frac{11}{2}^-)$ -Zustand postuliert, von dem aus der häufigste Übergang zum $(\frac{7}{2}^+)$ -Niveau und ein sel-

tener zum Grundzustand führt. Dieses Bild läßt sich gut auf den Zerfall des Sm-141 übertragen; die zweithäufigste γ -Linie (780 keV) und die Höhe des $(\frac{7}{2}^+)$ -Niveaus ergeben 975 keV, und zugleich werden γ -Quanten geringerer Intensität von 1000 ± 20 keV emittiert. Ergänzt man das bisher zusammengestellte Schema in der genannten Weise, dann ist allerdings unverständlich, daß zwischen dem $(\frac{11}{2}^-)$ - und dem $(\frac{13}{2}^+)$ -Niveau kein Übergang stattfinden sollte; eine γ -Linie von 365 keV wurde nicht gefunden. Deshalb wird für den Zustand bei 990 keV eher der Gesamtspin $(\frac{9}{2}^-)$ vorgeschlagen. (40)

Für eine Einordnung der übrigen γ -Linien bieten sich Kombinationen an, doch sind sie weniger gesichert. An dem vorgeschlagenen Teil-Schema erscheint befriedigend, daß die intensivste γ -Linie (195 keV) dem ersten angeregten Niveau zugeordnet wurde; dann bleibt Raum für verschiedene nicht direkt zum Grundzustand führende Übergänge. Unter diesem Gesichtspunkt wird auch die Tatsache verstanden, daß das Intensitätsverhältnis der 195 keV- und 430 keV-Linie beim Zerfall des Pm-141m wie 1,6 und in dieser Arbeit wie 2,6 gefunden wurde.

Sm-141 ist ein gu-Kern mit 79 Neutronen. Nach dem Schalenmodell sollte sein Grundzustand den Gesamtspin $(\frac{3}{2}^+)$ haben, außerdem kann man für das $(\frac{11}{2}^-)$ -Niveau aufgrund des stark verbotenen M4-Übergangs eine relativ lange Halbwertszeit erwarten. In Übereinstimmung hiermit hat der $(\frac{11}{2}^-)$ -Zustand in jedem der bisher bekannten Kerne mit 79 Neutronen eine Halbwertszeit von über einer Stunde. Über die Energie des metastabilen Zustandes im Sm-141 kann aus dem Gang der entsprechenden Werte der isotonen gu-Kerne eine Vermutung abgeleitet werden (Abbildung 22). Danach sollte das $(\frac{11}{2}^-)$ -Niveau bei etwa 200 keV liegen. Ein isomerer Übergang der 24 Minuten-Aktivität ist zu weniger als 1 % zu erwarten. Denn nach den Berechnungen von Weisskopf (44) sollte die partielle Halbwertszeit für diesen Übergang $10^5 - 10^6$ Sekunden (1 - 10 Tage) betragen. Da die meßbare Halbwertszeit aber nur 24 Minuten beträgt, kann dieser Übergang am Zerfall nur unbedeutend beteiligt sein.

Auffallend ist die Ähnlichkeit der Halbwertszeit vom metastabilen Zustand der Mutter und Grundzustand der Tochter (23,5 und 20,9 Minuten), was sich bei den entsprechenden Zuständen der nächstgelegenen Isotone ungerader Massenzahl Nd- und Pr-139 wiederholt (5,5 und 4,95 Stunden). Da die Halbwertszeit des Nd-139g 30,5 Minuten beträgt (14), kann man für Sm-141g etwa 2 Minuten erwarten.

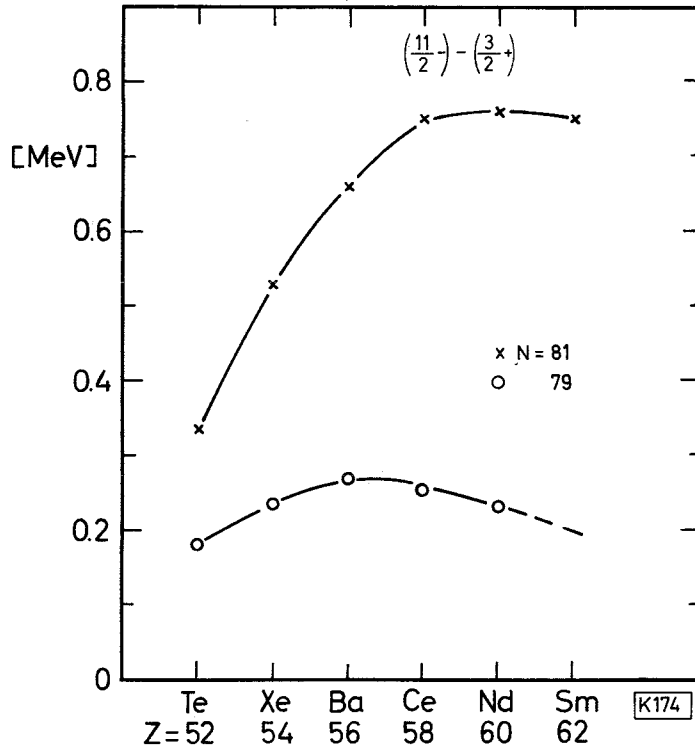


Abb. 22 Energiedifferenz von Zuständen in g_u -Kernen

Nach Abschluß dieser Arbeit wurde eine Veröffentlichung von Herrmann und Mitarb. (26) bekannt, in der die getroffene Zuordnung der 24-Minuten-Aktivität bestätigt wurde. Herrmann und Mitarbeiter hatten aus einem mit Protonen von 660 MeV bestrahlten Tantal-Target Samarium abgetrennt. Aus diesem Samarium-Präparat konnten sie in Abständen von etwa 25 Minuten 4 mal Neodympräparate isolieren, deren Aktivität mit einer Kombination der Halbwertszeiten 2,5 h und 3,3 d abnahm. Aus den bekannten Massenzahlen dieser Neodym-Aktivitäten (Nd-141 und 140) und der abnehmenden Stärke der einzelnen Komponenten in den verschiedenen Neodympräparaten ermittelten Herrmann und Mitarbeiter für Sm-141 eine Halbwertszeit von $22,5 \pm 1,4$ Minuten, die mit der in dieser Arbeit gefundenen Halbwertszeit von $23,5 \pm 0,5$ Minuten innerhalb der Fehlergrenzen gut übereinstimmt.

Pavlotskaja und Lavrukhina (1) hatten Sm-141 mit einer Aktivität identifiziert, die mit einer Halbwertszeit von 17,5 - 22 Tagen abfällt. Die Autoren fanden diese Aktivität in der Samarium-Fraktion eines mit Protonen von 680 MeV bestrahlten Urantargets. Da noch 30 Stunden nach Bestrahlungsende eine Promethium-Aktivität von 38 - 40 Minuten Halbwertszeit und eine Neodym-Aktivität von 2,7 Stunden Halbwertszeit, die sie dem Pm- bzw. Nd-141 zuordneten, vorhanden war, ordneten die Autoren die genannte lange Samarium-Aktivität der gleichen Massenzahl zu. Die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente gaben keinen Hinweis auf die Existenz eines Zustandes des Sm-141 mit der Halbwertszeit von ungefähr 20 Tagen. Der eingangs geäußerte Zweifel an der Richtigkeit des Ergebnisses von Pavlotskaja und Lavrukhina wird deshalb als berechtigt angesehen.

4. Experimenteller Teil

4.1. Versuche zur elektrophoretischen Ionenfokussierung

Diese Experimente wurden mit der von Friedli und Schumacher angegebenen Apparatur und nach deren Arbeitsvorschriften durchgeführt (3).

4.2. Untersuchung der Elutionschromatographie an Kationenaustauschersäulen

a) Apparatur: Das Ionenaustauschermaterial wurde in Glasrohre von 2 mm Innendurchmesser gefüllt. Die Höhe der Packungen betrug zwischen 6 und 70 cm. Ein Ende der Glasrohre war zu einer Spitze ausgezogen. Auf der anderen Seite schloß sich eine zylindrische Erweiterung an, deren Rauminhalt das 5 - 10-fache Volumen der Ionenaustauscherpackung ausmachte und als Vorratsgefäß für die Elutionslösung diente. Dieser Teil der Apparatur ließ sich über einen Kugelschliff mit einem Überdruckreservoir verbinden. Es bestand aus einer Stickstoffbombe mit einem besonders fein regulierenden Druckminderer (Dräger Saturn). Mit dem Überdruck wurde die Strömungsgeschwindigkeit der Elutionslösung variiert. Zur Apparatur gehörte noch ein Motor, mit dem ein Papierstreifen unterhalb der Säule vorbeigezogen wurde, um die Elutionslösung aufzufangen.

b) Ausführung: Das Verhalten der einzelnen Lanthanide unter bestimmten Bedingungen wurde stets in getrennten Experimenten untersucht. Zunächst wurde die Ionenaustauscher-Säule durch Spülen mit der Elutionslösung mit NH_4^+ -Ionen beladen. Danach wurden 20 μl einer neutralen, wäßrigen Lösung eines Lanthanids am Kopf der Säule aufgegeben. Darin waren maximal 200 μg der Chloride, Nitrate oder Sulfate des radioaktiv markierten Elementes enthalten. Nach dem Eindringen dieser Lösung in die Ionenaustauscherpackung wurde die Elutionslösung aufgefüllt und mit der Elution begonnen. Es erwies sich als günstig, zunächst mit nur 1 Tropfen der Elutionslösung den am Glas haftengebliebenen Anteil der Lanthanid-Lösung in die Säule zu spülen und erst dann die ganze Menge der Elutionslösung aufzugeben. Dadurch kann der nachschleppende Teil der Bande eines Elementes (tailing) wesentlich verkleinert werden. Die Strömungsgeschwindigkeit der Elutionslösung betrug zwischen $5 \cdot 10^{-4}$ und $1,5 \cdot 10^{-1}$ $\text{ml}/\text{cm}^2 \text{sec}$, wozu ein Druck bis 4 atü erforderlich war. Das Eluat wurde tropfenweise auf dem Papierstreifen aufgefangen. Die Konzentrationsverteilung eines Elementes (Elutionskurve) ließ sich aufgrund der Aktivitätsverteilung feststellen.

Die Ermittlung des Volumens der flüssigen Phase innerhalb der Ionenaustauscherpackung (β) erfolgte unter Verwendung des farbigen Chromat-Anions. Während seiner gut erkennbaren Wanderung durch die Säule wurde das Eluat gesammelt und anschließend ausgewogen.

c) Chemikalien, Elutionslösungen und Radioindikatoren:

α -Hydroxyisobuttersäure (α -HIB) purum wurde von der Fa. Fluka bezogen. Die Herstellung der α -Methyl- α -hydroxyisobuttersäure übernahmen freundlicherweise Mitarbeiter der Arbeitsgruppe für Markierungssynthesen unter der Leitung von Dr. K.-H. Schweer im Institut für Strahlenchemie. Die wäßrigen Lösungen dieser Komplexbildnersäuren hatten im Falle der α -HIB (α -MHB) eine Molarität von 0,4 bis 0,7 (0,2 - 0,4). Durch Zusatz von konz. Ammoniak-Lösung wurden sie auf einen bestimmten pH-Wert zwischen 3,55 und 4,45 (3,98 - 4,90) gebracht. Als Kationenaustauschermaterial diente Dowex 50W, X4, -400 mesh.

Die benutzten Radioindikatoren wurden durch (n, γ)-Reaktionen im FR2 hergestellt oder gekauft. Es handelte sich um Nd-147, Pm-147, Sm-153 und Eu-152/154.

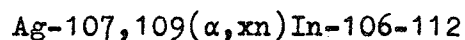
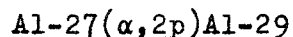
4.3. Bestrahlung und Aufarbeitung von Nd-142 (Trennungen)

a) Target: Für ein Experiment wurden etwa 500 μg Nd_2O_3 als Targets substanz eingesetzt. Darin waren die stabilen Nd-Isotope bzw. andere Lanthanide mit der folgenden Häufigkeit vertreten:

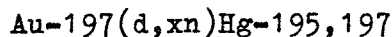
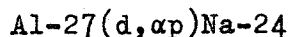
Nd-142	97,45 % \pm 0,04	Ce	<0,4 %
Nd-143	1,04 % \pm 0,02	Pr, Sm, Dy	<0,2 %
Nd-144	0,89 % \pm 0,02	Tb, Ho	<0,1 %
Nd-145-150	0,62 %		

Das Oxid wurde durch Elektrodeposition in acetonischer Lösung (45) auf eine 10 μ starke Folie gebracht. Die bedeckte Fläche betrug 4 x 6 mm, was mit dem Querschnitt des Strahls übereinstimmt. Durch Falzen der Folie wurde die Targets substanz beidseitig abgedeckt. Das so entstandene Briefchen wurde in einem der üblichen Targethalterungen eingespannt.

Als Folienmaterial wurde Aluminium, Silber oder Gold benutzt. Dabei stellte sich heraus, daß sich die ersten beiden für Experimente mit α -Teilchen nicht eignen. Durch die Reaktionen



wurden Radionuklide gebildet, welche die Untersuchung der Seltenen Erdmetalle stören und durch das angewandte Trennverfahren nur unvollständig entfernt werden konnten. Das bei Verwendung von Goldfolien hauptsächlich entstehende Thallium ließ sich dagegen gut abtrennen, ebenso wie die Reaktionsprodukte von Deuteronen mit dem verschiedenen Folienmaterial. Es handelte sich hierbei um die wie folgt gebildeten Aktivitäten:



b) Bestrahlung: Die Targets wurden in der Regel für die Dauer einer Halbwertszeit des erwünschten Radionuklids, höchstens aber 25 Minuten, bestrahlt. Die Strahlstromstärke betrug zwischen 1 und 4 μA , die jeweils gewählte Teilchenenergie ist in Tabelle 2 zusammengestellt.

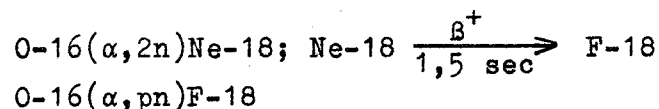
c) Aufarbeitung: Für das Ausfahren des bestrahlten Target aus dem Zyklotron, den Transport mit einer Targetbahn in das Laboratorium und das Ausspannen aus der Halterung sind etwa 4 Minuten erforderlich. Erst danach konnte mit der Aufarbeitung begonnen werden. Das Oxid wurde mechanisch von der Folie entfernt, in einem Porzellantiegel mit 1 Tropfen 1m HCl gelöst, zur Trockene gedampft und der Rückstand mit Wasser wieder aufgenommen. Nach dem Einengen der Lösung auf etwa 20 µl wurde sie auf die Säule gebracht und in die Ionenaustauscherpackung hineingedrückt. Die jeweiligen Bedingungen der Elution und das Trennergebnis sind in Tabelle 8 zusammengestellt. Die erwünschte Fraktion eines Elementes wurde auf Filterpapier aufgefangen, dieses unter IR-Lampen getrocknet und auf Präparateträger geklebt.

Tabelle 8 Elutionsbedingungen und Trennergebnis

Trennung	Elutionslösung	Höhe der Ionenaustauscherpackung	Elutionsdauer bei v=1ml/cm ² sec	Trennfaktor bei 50%*) Ausbeute
Pm, Nd	0,4m α-HIB pH=3,80	20 cm	12 Minuten	2·10 ³
Pm, Nd	0,2m α-MHB pH=4,62	6 cm	3 Minuten	2·10 ³
Sm, Pm	0,2m α-MHB pH=4,62	14 cm	3,5 Minuten	10 ⁴

*) Werte aus Parallelexperimenten mit jeweils einem Element; tatsächliche Trennfaktoren wegen Nachwachsens der Töchter etwas niedriger

Bei Bestrahlungen von Oxiden mit α-Teilchen entsteht in erheblichen Mengen F-18, und zwar hauptsächlich durch die beiden Reaktionen:



F-18 zerfällt unter Positronenemission mit einer Halbwertszeit von 108 Minuten und stört deshalb besonders die Untersuchung des mit 72 Minuten abfallenden Sm-142. Die Fluorabtrennung war unter den beschriebenen Versuchsbedingungen ungenügend. Die Banden der Elemente folgten dicht aufeinander, was bei der relativ großen Menge des schneller wandernden Fluors zu Überlagerungen führte. Zur Entfernung des Fluors

wurde die bestrahlte Targets substanz in einem Platintiegel zweimal mit konz. H_2SO_4 und verd. HF zur Trockene gedampft, danach mit Wasser aufgenommen und weiter wie oben beschrieben behandelt. Auf diese Weise gelang es, die Menge des F-18 um mindestens den Faktor 10^3 zu verringern.

4.4. Messungen und Meßgeräte

Bei jedem Experiment wurde von einem kleinen Teil der abgetrennten Aktivität mit einem Methandurchflußzähler der Aktivitätsabfall gemessen. Die Hauptmenge wurde für die γ -Spektroskopie gebraucht.

Die γ -Meßanordnung bestand aus einem 2 x 2 inch NaJ(Tl)-Kristall der Firma Harshaw (integral line, Auflösung bei 662 keV = 8,5 %) und einem 512-Kanal-Impulshöhenanalysator der Firma Nuclear Data (ND 120). Zur Messung wurde die über eine Fläche von etwa 4 x 4 cm verteilte Aktivität mit 6 mm Graphit abgedeckt und in einer Entfernung von (meist) 10 cm montiert. Es wurde keine Abschirmung verwandt.

Zur Untersuchung des besonders viele Positronen emittierenden Sm-142 wurde einmal zusätzlich ein Kollimator zwischen dem Meßpräparat und dem Detektor angebracht. Dadurch kann die relative Häufigkeit der vom Kristall registrierten β^+ -Vernichtungsstrahlung auf etwa die Hälfte verringert werden (46).

5. Zusammenfassung

- a) Zur Entwicklung einer schnellen Trennung benachbarter Seltener Erdmetalle wurden einige Parameter der Elutionschromatographie an Kationenaustauschersäulen eingehend untersucht.
- b) Es wurde gezeigt, daß die für eine schnelle Trennung günstigsten Werte der Verteilungskoeffizienten mit Hilfe eines einfachen Optimierungsverfahrens ermittelt werden können.
- c) Unter Anwendung der optimalen Arbeitsbedingungen war es möglich, aus einem Gemisch von maximal 200 µg der Lanthanide Pm, Nd und Pr bzw. Sm, Pm und Nd 50 % desjenigen mit der höchsten Ordnungszahl innerhalb von 3 Minuten mit einer Anreicherung $\geq 10^3$ zu isolieren. Wird anstelle von α -Methyl- α -hydroxybuttersäure als Komplexbildner α -Hydroxyisobuttersäure verwendet, dann erhöht sich die entsprechende Trenndauer etwa um den Faktor 2.
- d) Durch (d,xn) bzw. (α ,xn)-Reaktionen mit Nd-142 wurden die neutronenarmen Radionuklide Pm-139, Pm-140, Pm-141, Sm-141, Sm-142 und Sm-143 erzeugt, von denen die drei durch Unterstreichen gekennzeichneten bisher nicht bekannt waren.
- e) Aus Messungen des Aktivitätsabfalls und des γ -Spektrums konnten deren Halbwertszeit sowie die Energie und relative Intensität der bei ihrem Zerfall emittierten γ -Quanten bestimmt werden.
- f) Die Diskussion der ermittelten Daten führte zu Vorschlägen für die Zerfallsschemata der Radionuklide.

6. Literatur

- (1) F.I. Pavlotskaya, A.K. Lavrukhina
Atomnaya Energ. 1 (5), 115 (1956); J. Nucl. Energy 5, 149 (1957)
- (2) E. Schumacher, Helvet. Chim. Acta 40, 221 und 2322 (1957)
- (3) W. Friedli und E. Schumacher, Helvet. Chim. Acta 44, 1829 (1961)
- (4) E. Glueckauf, Trans. Faraday Soc. 51, 34 (1955)
Ion Exchange and its Application, Herausgeber Society Chemical
Industry, London 1955, S. 34
vgl. auch F. Helfferich, Ionenaustauscher, Weinheim/Bergstraße 1959,
Band 1, S. 403
- (5) F. Helfferich, a.a.O., S. 146
- (6) M. Vobecky und A. Mastalka, Collect. Czech. Chem. Commun. 28, 709(1963)
- (7) T. Nishi und J. Fujiwara, J. Atomic Energy Soc. Japan 6, 15 (1964)
UCRL - Trans - 1118 (L)
- (8) H.L. Smith und D.C. Hoffman, J. Inorg. Nucl. Chem. 3, 243 (1956)
- (9) F. Helfferich, a.a.O. S. 276;
Handbook of Chemistry and Physics, Herausgeber C.D. Hodgman,
44. Auflage, Cleveland 1961, S. 2274
- (10) W. Seelmann-Eggebert und G. Pfennig, Nuklidkarte, 2. Auflage,
2. Nachdruck (1965) herausgegeben vom Bundesminister für wissen-
schaftliche Forschung der BRD
- (11) M. Kaplan, Phys. Rev. 143, 894 (1966)
- (12) D. Vinciguerra, K. Kotajima und R.E. van de Vijver,
Nucl. Phys. 77, 337 (1966)
- (13) A. Cameron, CRP-690 (1957)
- (14) J. Lange, Dissertation, Karlsruhe 1967; KFK-519
- (15) H. Münzel, Veröffentlichung in Vorbereitung
- (16) T. Schneider und H. Münzel, Atompraxis 7, 1 (1961)
- (17) R. van Lieshout, A.H. Wapstra, R.A. Ricci und R.K. Girgis
Scintillation Spectra Analysis in Alpha-, Beta- and Gamma-Ray-
Spectroscopy, herausgegeben von K. Siegbahn, Amsterdam 1965
Band 1, S. 514
- (18) V. Kistiakowsky, Phys. Rev. 87, 859 (1952)
- (19) I. Gratot, M. le Pape, J. Olkowsky und G. Ranc
Nucl. Phys. 13, 302 (1959)
- (20) V.V. Remaev, V.T. Gritsyna und A.P. Klyucharev
Sch. Eksp. Teoret. Fisik USSR 42, 408 (1962)
Soviet Physics JETP 15, 283 (1962)
- (21) A.H.W. Aten jr. und J.C. Kapteijn, Physica 32, 1159 (1966)
- (22) K. Gromov, J. Demeter, Sch. Schelew
Nucl. Phys. 88, 225 (1966)
- (23) F. Everling, N.B. Gove und R. van Lieshout
B-Disintegration Energy Charts, Nuclear Data Projekt (1961)
- (24) A.H. Wapstra, G.J. Nijgh und R. van Lieshout
Nuclear Spectroscopy Tables, Amsterdam 1959, S. 65

- (25) S.A. Moszkowski, Phys. Rev. 82, 35 (1951)
- (26) E. Herrmann, G. Pfrepper und D. Christov, R-2647 (1966)
- (27) J.R. van Hise, B.H. Ketelle und A.R. Brosi, ORNL-3832 (1965)
- (28) S. Morinobu, T. Hirose und K. Hisatake, Nucl. Phys. 61, 613 (1965)
- (29) vorläufiges Ergebnis von G. Pfennig und H. Münzel
- (30) M. Mirnik und A.H.W. Aten jr., Physica 22, 14 (1956)
- (31) K. Kotajima und H. Morinaga, Nucl. Phys. 16, 231 (1960)
- (32) H.P. Malan, H. Münzel und G. Pfennig, Radiochimica Acta 5, 24 (1966)
- (33) D.R. Koehler und J.T. Grissom, Nucl. Phys. 84, 235 (1966)
- (34) vgl. Nuclear Data Sheets (1961)
- (35) W.B. Walters, C.E. Bemis jr. und G.E. Gordon
Phys. Rev. 140, B276 (1965)
- (36) G.B. Holm, U. Fägerquist und J. Bergström, Phys. Letters 6, 324 (1963)
- (37) J.N. Haag, D.A. Shirley und D.H. Templeton, Phys. Rev. 129, 1601 (1963)
- (38) J.T. Wasson und C.D. Coryell, J. Inorg. Nucl. Chem. 20, 1 (1961)
- (39) K. Gromov, B. Dzhelepov, Z. Zhelev, ... R-1857 (1964)
- (40) K. Gromov, A. Danagulyan, L. Nikityuk
Sch. Eksp. Teoret. Fizik USSR 47, 1644 (1964)
Soviet Physics JETP 20, 1104 (1965)
- (41) T.V. Marshall, UCRL-8740 (1960)
- (42) P.R. Christensen und Fu-Chia Yang, Nucl. Phys. 72, 657 (1965)
- (43) K. Hisatake und Y. Yoshida, Nucl. Phys. 56, 625 (1964)
- (44) Weisskopf-Abschätzung, dargestellt in A.H. Wapstra, G.J. Nijgh
und R. van Lieshout, a.a.O., S.73
- (45) R. Jacobson private Mitteilung
- (46) T. Schneider private Mitteilung