

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

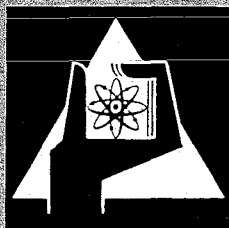
April 1971

KFK 1393

Institut für Radiochemie

Systematik der Halbwertszeiten der Actiniden
und Zerfall von Pu-235

K. A. Keller



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

April 1971

K F K 1393

Institut für Radiochemie

Systematik der Halbwertszeiten der Actiniden
und
Zerfall von Pu-235

von

K.A. Keller

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

THE HISTORY OF THE

REIGN OF KING CHARLES THE FIRST

BY JOHN BURNET

IN TWO VOLUMES

VOLUME I

1688

LONDON: Printed by J. Sturges, at the Black-Swan in St. Dunstons Church-yard, 1724.

Zusammenfassung

Zur Berechnung der partiellen Halbwertszeiten des α -Zerfalls und Elektroneneinfangs wurden halbempirische Gleichungen abgeleitet. Durch die Berücksichtigung einer mittleren Anregungsenergie der Tochterkerne konnte eine wesentliche Verbesserung der Genauigkeit erreicht werden. Um die Kenntnisse über die Systematik der mittleren Anregungsenergie zu erweitern, wurde der Zerfall von Pu-235 experimentell untersucht.

Summary

For the prediction of partial half-lives for α -decay and electron capture, semiempirical relationships were derived. By use of mean excitation energies of the daughter nucléides an improved accuracy could be obtained. The decay of Pu-235 was investigated to extend the systematics of the mean excitation energies.

Inhaltsverzeichnis	Seite
1. Einleitung	1
2. Berechnung der partiellen Halbwertszeiten	1
2.1. Der Elektroneneinfang	1
2.2. Der α -Zerfall	9
2.3. Die Spontanspaltung	14
3. Berechnung der totalen Halbwertszeiten	16
4. Bestimmung der mittleren Anregungsenergie von Pu-235	27
4.1. Erzeugung des Nuklids Pu-235	27
4.2. Chemische Trennung der Radionuklide	30
4.2.1. Flüssig-Flüssig-Extraktion	30
4.2.2. Ausführung der Trennung	30
4.2.3. Zeitdauer, Ausbeute und Dekonta- minationsfaktor	31
4.3. Zerfallseigenschaften von Pu-235	32
4.3.1. Aufnahme und Analyse der γ -Spektren	33
4.3.2. Ergebnisse und Diskussion	33
5. Literaturverzeichnis	41

Handwritten text, likely bleed-through from the reverse side of the page. The text is extremely faint and illegible due to the quality of the scan and the nature of the bleed-through.

1. Einleitung

Das wachsende Interesse an der Untersuchung der Isotope der schwersten Elemente hat in den letzten Jahren die Zahl der Zerfallsdaten wesentlich vergrößert. Zur Zeit werden beträchtliche Bemühungen zur Erzeugung unbekannter Nuklide unternommen. Die Planung solcher Untersuchungen wird durch die Kenntnis der zu erwartenden Halbwertszeit und der bevorzugten Zerfallsart wesentlich erleichtert. Außerdem vereinfacht eine Zerfallssystematik die Zuordnung unbekannter Kerne. In der vorliegenden Arbeit wurde deshalb versucht, mit Hilfe der neuesten Zerfallsdaten eine genauere Abschätzung der Halbwertszeiten neutronenarmer Isotope der Actiniden bis zur Ordnungszahl 108 zu erreichen.

2. Berechnung der partiellen Halbwertszeiten

Im Massenbereich neutronenarmer Isotope der schwersten Elemente sind drei Zerfallsprozesse von Bedeutung: der Elektroneneinfang, der α -Zerfall und die Spontanspaltung. Im folgenden wird die Berechnung der partiellen Halbwertszeiten der einzelnen Zerfallsarten beschrieben.

2.1. Der Elektroneneinfang

Bei dieser Zerfallsart überwiegt immer der Einfang von K-Elektronen, falls er energetisch möglich ist. Für die besonders häufig vorkommenden erlaubten oder einfach verbotenen Übergänge ergibt sich die Zerfallswahrscheinlichkeit λ_K des K-Einfangs nach KONOPINSKI (4) zu

$$\lambda_K = \frac{g^2 \cdot g_K^2}{4 \cdot \pi^2} \cdot q_K^2 \cdot S_{0,1} \quad \text{Gl. 1}$$

g^2 : universelle Kopplungskonstante

g_K^2 : Radialamplitude für die Hauptquantenzahl $n = 1$ (K-Schale)

q_K : Energie des Neutrinos beim K-Einfang

S : Shape-Faktor

In dieser Gleichung wird bei erlaubten Übergängen ($\Delta I = 0^+, 1^+$) der Shape-Faktor S_0 benutzt und S_1 bei den einfach verbotenen Übergängen ($\Delta I = 0^-, 1^-$). Beide Faktoren sind unabhängig von der Neutrinoenergie q_K .

Zum Druck eingereicht am 1.4.1971.

Ersetzt man λ_K durch die partielle Halbwertszeit t_K des K-Einfangs, so kann man Gl. 1 folgendermaßen schreiben

$$q_K^2 \cdot t_K = \frac{4 \cdot \pi^2 \cdot \ln 2}{g^2 \cdot g_K^2} \cdot \frac{1}{S_{0,1}} \quad \text{Gl. 2}$$

Das Quadrat der Neutrinoenergie q_K ist gleich der aus log ft-Nomogrammen von MOSZKOWSKI (5) bekannten statistischen Raten-Funktion f_K des K-Einfangs. Die rechte Seite von Gl. 2 ist für erlaubte und einfach verbotene Übergänge über die Funktion g_K^2 nur von der Ordnungszahl Z abhängig. Damit ist das Produkt $q_K^2 \cdot t_K$ für ein gegebenes Z gleich einer Konstanten, dem ft-Wert. Mit Gl. 2 lassen sich demnach unbekannte partielle Halbwertszeiten t_K erlaubter und einfach verbotener Übergänge bei Kenntnis der Neutrinoenergie q_K und des log ft-Wertes berechnen. Bei mehrfach verbotenen Übergängen gilt der obige einfache Zusammenhang nicht mehr, da der Shape-Faktor S energieabhängig ist.

Von diesen Überlegungen ausgehend, ermittelten VIOLA und SEABORG (1) aus bekannten Zerfallsdaten des Elektroneneinfangs (6) folgende mittlere log ft-Werte für Kerne mit $Z > 82$ und $N > 126$.

Tabelle 1 Mittlere log ft-Werte nach (1)

Kerntyp	$\langle \log ft \rangle$
g-g	$6,2 \pm 1,3$
g-u	$6,2 \pm 1,3$
u-g	$6,1 \pm 0,8$
u-u	$6,9 \pm 0,7$

Sie setzten dabei voraus, daß bei schweren Kernen überwiegend erlaubte oder einfach verbotene Zerfälle stattfinden. Ferner nahmen sie an, daß die Übergänge nur zum Grundzustand des Tochterkerns führen. Sie vernachlässigten also die Anregungsenergie und auch die Elektronenbindungsenergie. Dies bedeutet, daß bei VIOLA und SEABORG die Neutrinoenergie q_K gleich dem Q-Wert Q_ϵ des Elektroneneinfangs ist.

Aus den mittleren $\log ft$ -Werten und den geschätzten Q_ξ -Werten (7) berechneten sie mittels der MOSKOWSKI-Nomogramme die partiellen Halbwertszeiten t_ξ des Elektroneneinfangs unbekannter Nuklide. Die Genauigkeit liegt nach Tabelle 1 bei einem Faktor 5 bis 20 je nach Kerntyp.

Dieser Berechnungsart liegt eine quadratische Abhängigkeit der Zerfallswahrscheinlichkeit λ des Elektroneneinfangs von Q_ξ zugrunde. Die doppelt-logarithmische Auftragung der experimentellen Halbwertszeiten t_ξ gegen die entsprechenden Q_ξ -Werte zeigt jedoch, daß der Zusammenhang besser mit einem größeren Exponenten als 2 (Exponent von q_K in Gl. 1) beschrieben werden kann. Ausgleichsrechnungen ergaben z.B. bei g-u- und u-g-Kernen den Wert 3,5.

Ferner trifft die Annahme von VIOLA und SEABORG nicht zu, daß die ξ -Übergänge nur zum Grundzustand des Tochterkerns erfolgen. Vielmehr läßt sich an Hand von Zerfallsschemen (8, 9) zeigen, daß bei einer großen Anzahl von Kernen intensive ξ -Übergänge zu höherenergetischen Tochterzuständen führen. Da sich dabei die Neutrinoenergie q_K oft erheblich vom Q_ξ -Wert unterscheidet, sind für eine genauere Abschätzung der partiellen Halbwertszeit t_ξ des Elektroneneinfangs unbedingt die Anregungsenergien der Tochterkerne zusammen mit der Elektronenbindungsenergie zu berücksichtigen.

Die partielle Halbwertszeit t_ξ eines Nuklids erhält man aus den partiellen Halbwertszeiten der einzelnen ξ -Übergänge. Unter der Annahme einer statistischen Verteilung der Niveaus wurde mit Gl. 1 und dem Ansatz (10)

$$\rho(E_A) \propto E_A^{-2} \exp(2 \cdot \sqrt{a \cdot E_A}) \quad \text{Gl. 3}$$

für die Niveaudichte ρ eine Abschätzung der Population der Zustände der Tochterkerne durchgeführt. Dabei zeigte es sich, daß mit steigenden Q_ξ -Werten der Zerfall bevorzugt zu höherangeregten Niveaus führt.

Diese Tendenz wird durch experimentelle Daten bestätigt. Da jedoch die Energien der populierten Niveaus der Tochterkerne nicht vorhergesagt werden können, wurde versucht, eine mittlere Anregungsenergie einzuführen. Diese stellt den Mittelwert der Energien der durch ξ -Zerfall populierten Tochter-niveaus dar. Die Wichtung der Energien ist durch die prozentuale Häufigkeit des jeweiligen ξ -Übergangs gegeben:

$$\langle E_A(\xi) \rangle = \frac{\sum_j P_{\xi j} \cdot E_j}{\sum_j P_{\xi j}} \quad \text{Gl. 4}$$

$\langle E_A(\epsilon) \rangle$: mittlere Anregungsenergie des Tochterkerns für Elektroneneinfang

E_j : Energie eines Tochterniveaus j , zu dem ein ϵ -Übergang führt

$P_{\epsilon j}$: prozentuale Häufigkeit eines ϵ -Übergangs zum Niveau j .

Nach dieser Gleichung wurden im Gebiet $Z > 82$ und $N > 126$ die mittleren Anregungsenergien von Kernen mit bekanntem Zerfallsschema berechnet. Abb. 1 zeigt diese Werte in Abhängigkeit von den Q_ϵ -Werten. Danach ist die Anregungsenergie etwa gleich der Hälfte des Q_ϵ -wertes.

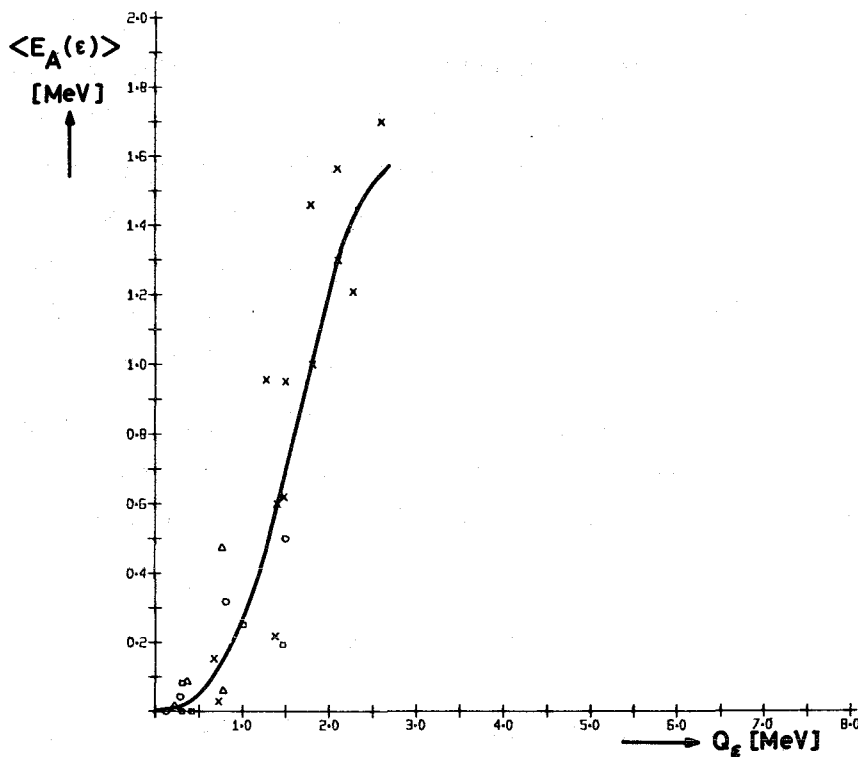


Abb. 1 Abhängigkeit der nach Gl. 4 berechneten mittleren Anregungsenergien

$\langle E_A(\epsilon) \rangle$ der Tochterkerne vom Q -Wert des Elektroneneinfangs. Der Kerntyp der Tochternuklide ist durch verschiedene Zeichen gekennzeichnet:

x : g-g-Kerne; o : g-u-Kerne; Δ : u-g-Kerne; \square : u-u-Kerne

Die Kurve wurde durch visuelle Anpassung an die experimentellen Werte erhalten.

Diesen Verlauf kann man gut mit Hilfe der Niveaudichte-Verteilung (Gl. 3) unter Verwendung der Konstanten $a = 12$ beschreiben. Ferner zeigte es sich, daß die mittleren Anregungsenergien der beim Zerfall von g-g-Kernen gebildeten Nuklide kleiner sind. Dies ist auch zu erwarten, da die Niveaudichten der entstehenden u-u-Kerne größer sind. Bei größeren Q_ϵ -Werten scheint die mittlere Anregungsenergie $\langle E_A(\epsilon) \rangle$ nicht mehr proportional zu Q_ϵ zu sein. Diese Tendenz stimmt nicht mit den theoretischen Abschätzungen überein. Da jedoch keine experimentellen Daten vorliegen, wurde für $Q_\epsilon > 3$ MeV eine mittlere Anregungsenergie von 1,6 MeV angenommen.

Da der Einfang aus höheren Schalen im allgemeinen nicht vernachlässigbar ist, wurden die partiellen Halbwertszeiten t_K des K-Einfangs aus t_ϵ -Werten berechnet. In 1. Näherung ergibt sich nach (11) für erlaubte und einfach verbotene ϵ -Übergänge die folgende Gleichung:

$$t_K = t_\epsilon \left[1 + \left(\frac{L_{LII}}{L_K} \right) \left(\frac{q_{LII}}{q_K} \right)^{C_2} \cdot \left(1 + \left(\frac{L_{LIII}}{L_{LII}} \right) \right) \right] \quad \text{Gl. 5}$$

- t_K : partielle Halbwertszeit des K-Einfangs
- t_ϵ : partielle Halbwertszeit des Elektroneneinfangs
- q_K : Neutrinoenergie beim K-Einfang
- q_{LII} : Neutrinoenergie beim LII-Einfang
- L_{LII}/L_K bzw. L_{LIII}/L_{LII} : Z-abhängige Konstanten nach (11)

Der Exponent 2 von q_K aus Gl. 1 wurde durch die Größe C_2 ersetzt. Die Z-abhängigen Konstanten im Bereich $Z = 101$ bis 108 und die Bindungsenergien B_K und B_{LII} für $Z > 104$ wurden durch Extrapolation erhalten.

Für den Zusammenhang zwischen der berechneten partiellen Halbwertszeit t_K und der Neutrinoenergie q_K wurde in Analogie zu Gl. 1 folgende allgemeinere Gleichung mit den Konstanten C_1 und C_2 angenommen.

$$t_K = C_1 \cdot q_K^{C_2} = C_1 \cdot (Q_\epsilon - \langle E_A(\epsilon) \rangle - B_K)^{C_2} \quad \text{Gl. 6}$$

- Q_ϵ : Q-Wert des Elektroneneinfangs
- $\langle E_A(\epsilon) \rangle$: mittlere Anregungsenergie
- B_K : Bindungsenergie der K-Elektronen
- C_1, C_2 : Konstanten

Der Exponent C_2 der Neutrinoenergie q_K sollte nach Gl. 1 den Wert 2 besitzen. Abb. 2 zeigt jedoch am charakteristischen Beispiel der u-g-Kerne, daß tatsächlich eine bessere Anpassung mit einem größeren Wert für C_2 erreicht werden kann. Eine Ausgleichsrechnung ergab die in Tab. 2 aufgeführten Werte, wobei t_K in min und q_K in MeV eingesetzt wurden.

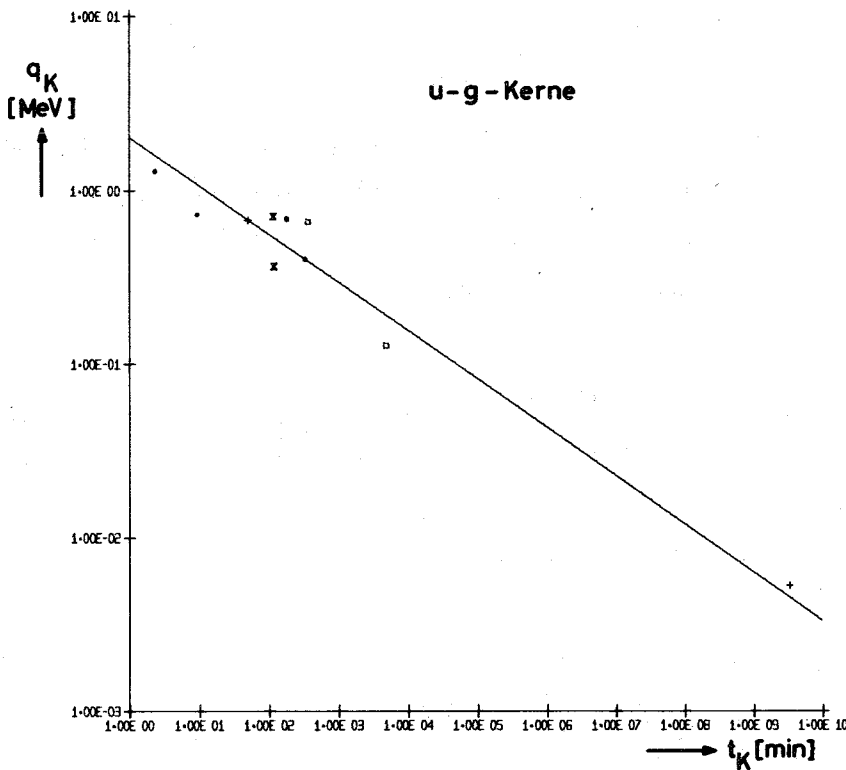


Abb. 2 Zusammenhang zwischen der Neutrinoenergie q_K und der Halbwertszeit t_K des K-Einfangs am charakteristischen Beispiel der u-g-Kerne. Werte mit unterschiedlicher Ordnungszahl Z sind durch verschiedene Zeichen dargestellt, deren Bedeutung sich aus Abb. 11 ergibt. Die Gerade ergab sich aus der Ausgleichsrechnung.

Die sich ergebenden Werte für C_2 bedeuten nicht, daß auch der Exponent von q_K in Gl. 1 größer als 2 sein sollte. Die größeren Werte sind wahrscheinlich auf die Mittelwertbildung bei der Berechnung der Anregungsenergien zurückzuführen. Dies ergibt sich durch einen Vergleich der Zerfallswahrscheinlichkeiten, welche einerseits nach Gl. 1 in Verbindung mit Gl. 3 und andererseits nach Gl. 6 berechnet wurden.

Tabelle 2 Werte der Konstanten C_1 und C_2 in Gl. 6

Kerntyp	C_1	C_2
g-g	119 \pm 46	-2,4 \pm 0,5
g-u	12 \pm 6	-4,3 \pm 0,4
u-g	12 \pm 6	-3,6 \pm 0,3
u-u	184 \pm 78	-4,5 \pm 0,7

Bei der Ausgleichsrechnung wurden unbekannte Anregungsenergien der Abb. 1 entnommen. Bei den g-g-Kernen standen nur zwei experimentelle Werte aus dem Bereich $Z > 82$ und $N > 126$ zur Verfügung. Um dennoch eine Halbwertszeitabschätzung zu erhalten, wurden ξ -Zerfallsdaten von Kernen mit $50 < Z < 82$, $82 < N < 126$ und $Z > 82$, $82 < N < 126$ herangezogen.

Die Fehler in der partiellen Halbwertszeit t_ξ sind in Tabelle 3 als Faktoren angegeben. Für den Fehler des Einzelwertes wurde die Formel $\sqrt{\frac{\sum (t - t_{\text{exp}})^2}{n-2}}$ benutzt und daraus der Fehler des Mittelwertes berechnet.

Tabelle 3 Fehler der Ausgleichsrechnung

Kerntyp	Fehler in der partiellen Halbwertszeit t_ξ für den		
	Einzelwert (diese Arbeit)	Mittelwert (diese Arbeit)	Mittelwert (VIOLA und SEABORG)
g-g	4,6	1,9	20
g-u	3,2	1,7	20
u-g	3,2	1,7	6
u-u	4,3	1,9	5

In Abb. 3 ist das Verhältnis aus experimenteller und berechneter partieller Halbwertszeit t_ξ des Elektroneneinfangs gegen die Neutronenzahl N der Mutternuklide aufgetragen. g-g-Kerne sind in dieser Darstellung nicht aufgeführt. Systematische Abweichungen sind aus der Abb. 3 nicht zu erkennen.

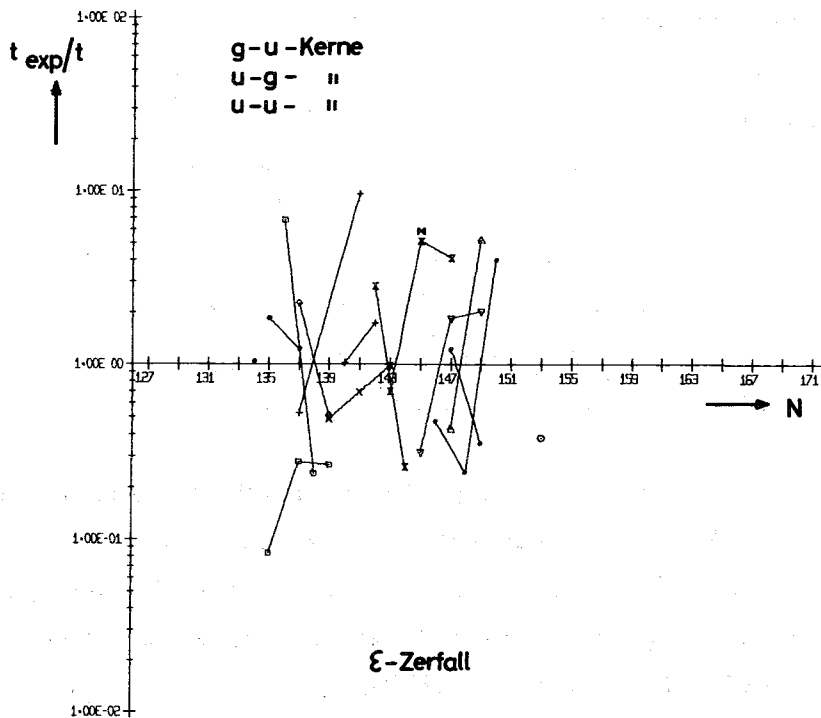


Abb. 3 Verhältnis aus experimenteller und nach Gl. 6 und 5 berechneter Halbwertszeit des Elektroneneinfangs gegen die Neutronenzahl N der Mutternuklide für g-u-, u-g- und u-u-Kerne. Für einen Kerntyp sind die Isotope eines Elements durch Geraden untereinander verbunden. Die unterschiedlichen Ordnungszahlen sind durch verschiedene Zeichen dargestellt (s. Abb. 11).

Wie man aus der Tabelle 3 ersieht, sind die Fehler im Vergleich zur Arbeit von VIOLA und SEABORG erheblich kleiner. Diese Verbesserung ist sowohl auf die allgemeinere Form der Gl. 6 als auch auf die Berücksichtigung der mittleren Anregungsenergie der Tochterkerne zurückzuführen.

2.2. Der α -Zerfall

Zur Berechnung der Zerfallswahrscheinlichkeiten von Grundzustandsübergängen bei g-g-Kernen haben sich einfache Barrieren-Formeln bewährt. So hat z.B. BETHE (12), vom Einteilchen-Modell mit Potentialtopf ausgehend, folgende Formel für die α -Zerfallswahrscheinlichkeit λ_α abgeleitet, unter der Voraussetzung, daß der Bahndrehimpuls des α -Teilchens gleich Null ist.

$$\lambda_\alpha = \frac{2^{1/2} \cdot \pi^2 \cdot \hbar^2}{\mu^{3/2} \cdot R^3 (V(R) - Q_{\text{eff}})^{1/2}} \cdot \exp \left[- 2 \cdot \frac{2 R V(R)}{\hbar v} \cdot (\alpha_0 - \sin \alpha_0 \cdot \cos \alpha_0) \right] \quad \text{Gl. 7}$$

$V(R)$: Potentialmaximum beim Kernradius R

μ : reduzierte Masse des α -Teilchens

v : relative Geschwindigkeit zwischen α -Teilchen und Tochterkern

α_0 : definiert durch $\cos^2 \alpha_0 = \frac{Q_{\text{eff}}}{V(R)}$

Q_{eff} : effektiver Q-Wert $Q_{\text{eff}} = Q_\alpha + \Delta E_{\text{sc}}$ (ΔE_{sc} : Abschirmungskorrektur (13))

Der Quotient vor dem Exponenten ist gleich dem Produkt aus der Stoßfrequenz des α -Teilchens am Potentialwall und dem Transmissionskoeffizienten beim Kernradius R , während die Exponentialfunktion die Durchdringungswahrscheinlichkeit des Coulombwalles beschreibt. Der erste Term ändert sich nur sehr wenig (innerhalb eines Faktors 1 bis 2); die Exponentialfunktion variiert dagegen für bekannte α -Emitter um über 20 Zehnerpotenzen.

Von TAAGEPERA und NURMIA (14) wurde Gl. 7 wie folgt vereinfacht:

a) Der erste Term ist konstant und wird gleich C_0 gesetzt.

b) Im Exponentialterm werden folgende Näherungen gemacht:

1. Für den Zusammenhang zwischen Nukleonenzahl A und Kernradius R der Tochter wird die Formel aus dem Tröpfchenmodell angenommen:

$$R = R_0 \cdot A^{1/3}$$

Im betrachteten Massenbereich gilt folgende Gleichung für die Beziehung zwischen Nukleonenzahl A und Kernladungszahl Z der Tochter bei einem Fehler von 5 %

$$A = 2,5 \cdot Z$$

und damit

$$R = 1,36 \cdot R_0 \cdot Z^{1/3}$$

2. Da $V(R)$ groß gegen Q_{eff} ist, hat $\cos \alpha_0$ einen sehr kleinen Wert, $\sin \alpha_0 \approx 1$ und $\alpha_0 \approx \frac{\pi}{2} - \cos \alpha_0$; der Fehler dieser Näherung beträgt 1 %.

Bei Berücksichtigung dieser Näherungen ergibt sich für den Logarithmus der partiellen α -Halbwertszeit folgende Gleichung:

$$\log t_{\alpha} = C_1 + C_2 \cdot \left(\frac{Z}{Q_{\text{eff}}^{1/2}} - C_3 \cdot Z^{2/3} \right) \quad \text{Gl. 8}$$

mit

$$C_1 = \log(\ln 2) - \log C_0 \quad \text{Gl. 9a}$$

$$C_2 = \frac{0,4343 \cdot 2\pi \cdot 2^{1/2} \cdot e^2 \cdot \mu^{1/2}}{\hbar} \quad \text{Gl. 9b}$$

$$C_3 = \frac{4 \cdot (1,36 \cdot R_0)^{1/2}}{2^{1/2} \cdot \pi \cdot e} \quad \text{Gl. 9c}$$

c) In einer weiteren Näherung werden C_1 , C_2 und C_3 als konstant angenommen. Die Konstante C_3 , deren Wert sich zu 1,07 ergibt, wird im folgenden gleich 1 gesetzt. Damit erhält man die lineare Gleichung

$$Y = C_2 \cdot X + C_1 \quad \text{Gl. 10}$$

$$\text{mit } Y = \log t_{\alpha}$$

$$X = Z \cdot Q_{\text{eff}}^{-1/2} - Z^{2/3}$$

Die Konstanten obiger Gleichung lassen sich entweder nach Gl. 9 berechnen oder durch Anpassung an experimentelle α -Zerfallsdaten ermitteln, wobei nach TAAGEPERA und NURMIA (14) eine Ausgleichsgerade eine bessere Anpassung ergibt.

GALLAGHER und RASMUSSEN (15) zeigten, daß eine ähnliche halbempirische Formel in Verbindung mit Hindrance-Faktoren F zur Abschätzung von partiellen α -Halbwertszeiten geeignet ist. Danach kann die partielle Halbwertszeit t_{α} durch folgende Gleichung beschrieben werden:

$$\log t_{\alpha} = A_Z \cdot Q_{\text{eff}}^{-1/2} + B_Z + \log F \quad \text{Gl. 11}$$

A_Z, B_Z : Z-abhängige Konstanten

F : Hindrance-Faktor von Kernen mit ungepaarten Nukleonen.

VIOLA und SEABORG (1) erhielten unter Benutzung dieser Beziehung und der experimentellen Daten von HYDE et al. (16) für g-g-Kerne im Bereich $Z > 82$ und $N > 126$ eine Standardabweichung vom Faktor 1,3. Für die übrigen Kerntypen bestimmten sie die in Tabelle 4 angeführten Hindrance-Faktoren. Bei vielen α -Übergängen treten jedoch erhebliche Abweichungen von den Mittelwerten der Tabelle 4 auf. So kann z.B. die Übergangswahrscheinlichkeit eines Kernes mit ungerader Massenzahl zum Grundzustand um den Faktor 10 000 kleiner sein als nach der halbempirischen Gleichung 11 erwartet wird. In vielen solchen Fällen wird die partielle Halbwertszeit t_α durch Übergänge zu angeregten Niveaus bestimmt. Zur Vorhersage von t_α ist also auch die Kenntnis der Anregungsenergie der Tochterkerne notwendig. Analog zum ξ -Zerfall wurden mittels bekannter Zerfallsschemen mittlere Anregungsener-

Tabelle 4 Mittlere Hindrance-Faktoren nach VIOLA und SEABORG (1)

Kerntyp	$\langle \log F \rangle$	$\langle F \rangle$
g-u	1,066	11,6
u-g	0,772	5,9
u-u	1,114	13,0

gien im Gebiet $Z > 82$ und $N > 126$ berechnet. Abb. 4 zeigt den Zusammenhang dieser Werte mit der Neutronenzahl N der Mutternuklide am Beispiel der g-g- und u-u-Kerne.

Für die Beziehung zwischen bekannten partiellen Halbwertszeiten t_α und den dazugehörigen Zerfallsenergien wurde die lineare Beziehung Gl. 10 benutzt, wobei von Q_{eff} die mittlere Anregungsenergie $\langle E_A(\alpha) \rangle$ abgezogen wurde.

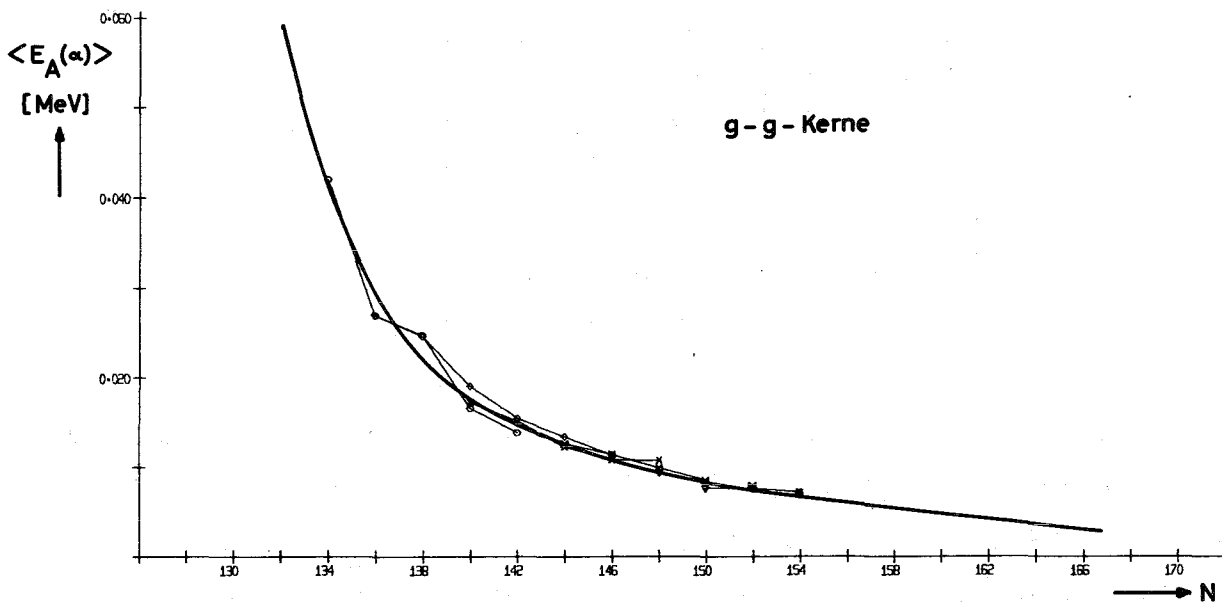
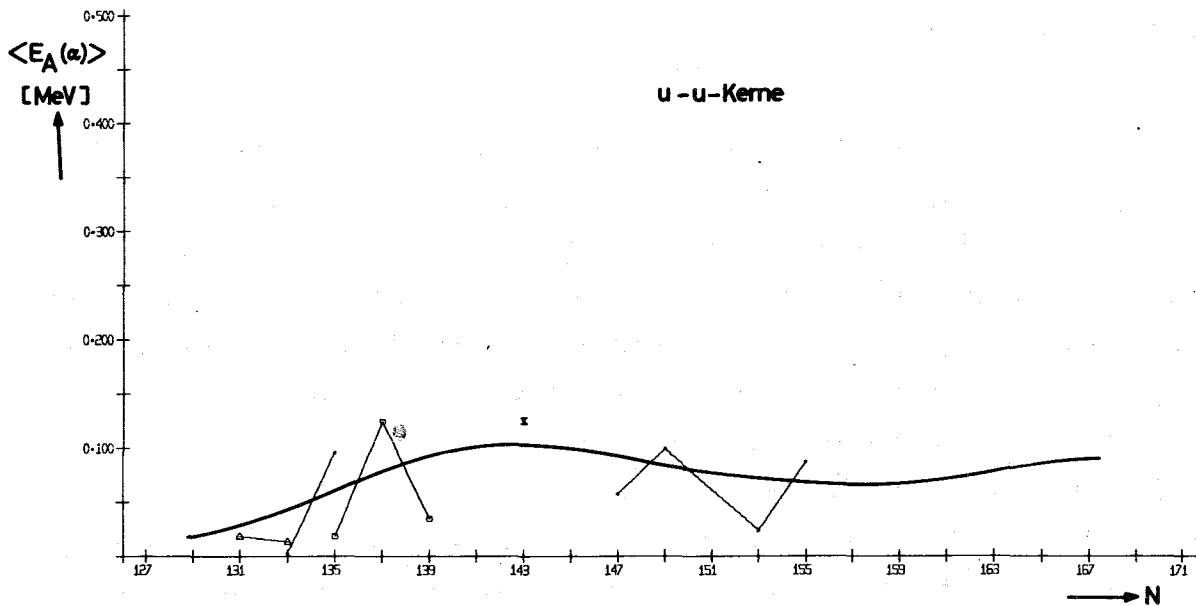


Abb 4 Abhängigkeit der mittleren Anregungsenergien $\langle E_A(\alpha) \rangle$ der Tochterkerne von der Neutronenzahl N der Mutterkerne am Beispiel der u-u- und g-g-Kerne. Die Isotope eines Elements sind durch Geraden untereinander verbunden. Die verschiedenen Zeichen (s. Abb. 11) stehen für die unterschiedlichen Ordnungszahlen. Die Kurven stellen den interpolierten bzw. extrapolierten Verlauf zur Bestimmung unbekannter Anregungsenergien dar.

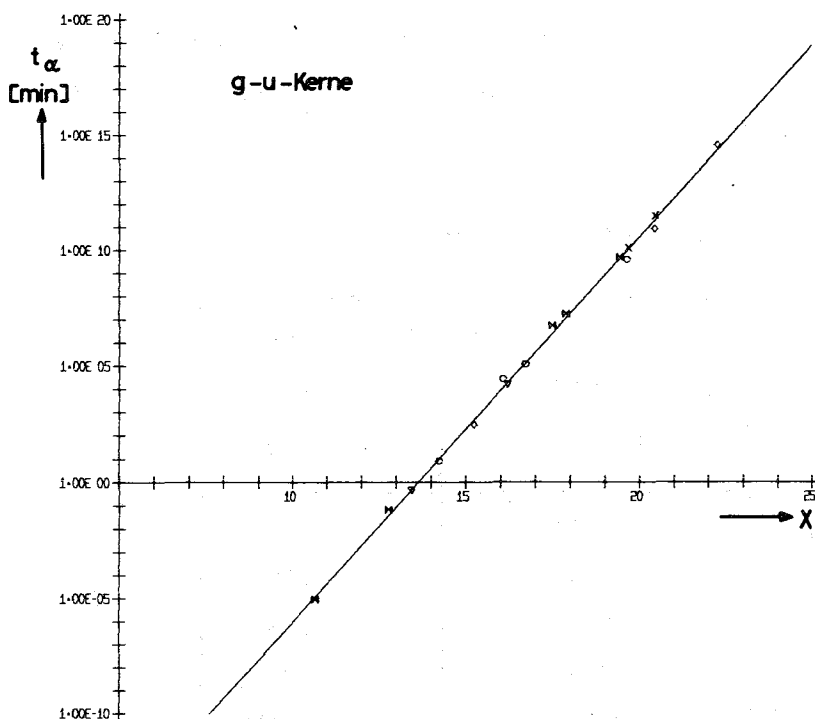


Abb. 5 Zusammenhang zwischen der partiellen Halbwertszeit t_α des α -Zerfalls und der Größe X (s. Gl. 10) für g-u-Kerne. Werte mit verschiedener Ordnungszahl Z sind durch verschiedene Zeichen dargestellt (s. Abb. 11). Die Gerade ergab sich durch eine Ausgleichsrechnung.

Da nach Abb. 5 die bekannten Werte einen sehr guten linearen Zusammenhang zeigen, wurden zur Bestimmung der Konstanten C_1 und C_2 Ausgleichsrechnungen durchgeführt. Die Ergebnisse mit Fehlern sind in Tabelle 5 zusammengestellt. Es fällt auf, daß die Konstanten für alle vier Kerntypen praktisch gleich sind.

Tabelle 5 Werte der Konstanten C_1 und C_2 in Gl. 10

Kerntyp	C_1	C_2
g-g	$- 22,5 \pm 0,2$	$1,63 \pm 0,01$
g-u	$- 22,6 \pm 0,3$	$1,66 \pm 0,02$
u-g	$- 22,9 \pm 0,4$	$1,68 \pm 0,02$
u-u	$- 22,3 \pm 0,9$	$1,67 \pm 0,06$

Wie beim ξ -Zerfall wurden die Standardabweichungen des Einzelwertes und des Mittelwertes der partiellen Halbwertszeit t_α berechnet und in Tabelle 6 als Faktoren angegeben.

Tabelle 6 Fehler der Ausgleichsrechnung

Kerntyp	Fehler in der partiellen Halbwertszeit t_α für den	
	Einzelwert	Mittelwert
g-g	1,75	1,14
g-u	1,61	1,15
u-g	1,66	1,19
u-u	2,38	1,52

Bei den g-g-Kernen ist der prozentuale Fehler um den Faktor 2 besser als bei der Arbeit von VIOLA und SEABORG. Ein Vergleich der anderen Kerntypen ist nicht möglich, da von den Autoren keine Fehlerangaben gemacht werden.

In Abb. 6 ist das Verhältnis aus experimenteller und nach Gl. 10 berechneter partieller Halbwertszeit t_α aufgetragen. Im Fall der g-g-Kerne ist das Ansteigen des Verhältnisses bei Annäherung an die magischen Neutronenzahlen $N = 126$ und 152 deutlich zu erkennen.

2.3. Der Zerfall durch Spontanspaltung

Zur Berechnung der partiellen Halbwertszeit t_f der Spontanspaltung wurden die Ergebnisse der Arbeit von VIOLA und WILKINS (3) herangezogen. Die Autoren geben für die Abhängigkeit der Spontanspaltungshalbwertszeit t_f von der Spalt-schwellenenergie E_f folgende Gleichung an:

$$\log t_f = 6,884 \cdot E_f - 21,50 \quad \text{Gl. 12}$$

Setzt man die Schwellenenergie E_f in MeV ein, so erhält man die partielle Halbwertszeit t_f in a. Die Autoren berechneten auf der Grundlage des Tröpfchenmodells unter Berücksichtigung von Kernstruktureffekten die Spaltschwellen

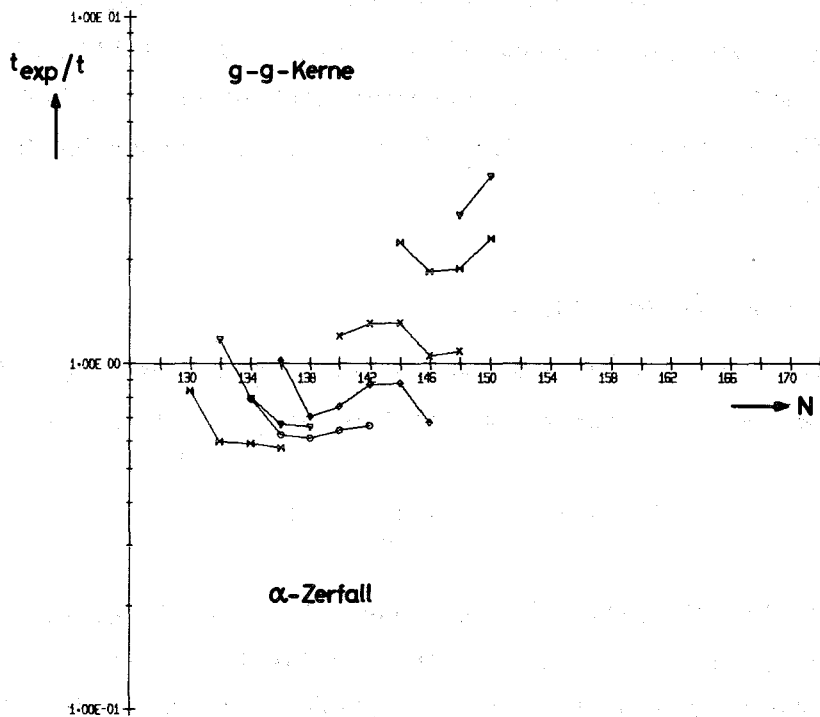
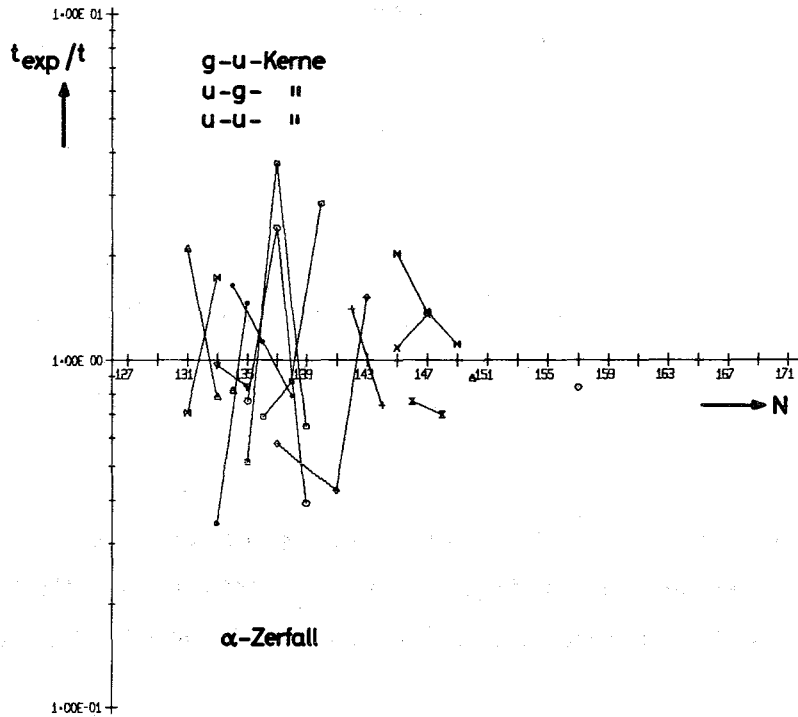


Abb. 6 Verhältnis aus experimenteller und berechneter partieller α -Halbwertszeit gegen die Neutronenzahl N der Mutternuklide. Für einen Kerntyp sind die Isotope eines Elements durch Geraden verbunden. Die unterschiedlichen Ordnungszahlen Z sind durch verschiedene Zeichen dargestellt (s. Abb. 11).

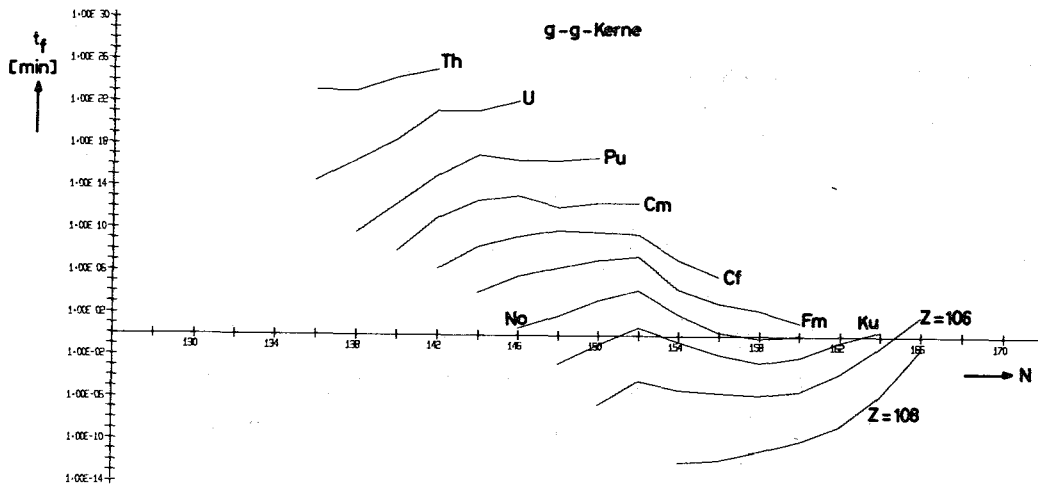


Abb. 7 Die nach Gl. 12 berechneten partiellen Halbwertszeiten t_f in Abhängigkeit von der Neutronenzahl N der g-g-Kerne. Die Werte der Isotope eines Elements sind durch Geraden untereinander verbunden.

E_f für Isotope der Elemente mit $88 \leq Z \leq 108$. In Abb. 7 sind die nach Gl. 12 erhaltenen partiellen Halbwertszeiten t_f dargestellt.

Ein Vergleich mit experimentellen Werten ergab nach VIOLA und WILKINS bei g-g-Kernen für die Standardabweichung einen Faktor 3,9, bei Berücksichtigung aller Kerne einen Faktor 7,0. Die Standardabweichungen der Spaltschwellen E_f betragen 90 keV für g-g-Kerne und 220 keV für alle gemessenen Werte mit Ausnahme der Americium-Isotope.

3. Berechnung der totalen Halbwertszeiten

Die totale Halbwertszeit t eines Nuklids ergibt sich bei Berücksichtigung des Elektroneneinfangs, des α -Zerfalls und der Spontanspaltung aus Gl. 13:

$$1/t = 1/t_\epsilon + 1/t_\alpha + 1/t_f \quad \text{Gl. 13}$$

Für die Berechnung der partiellen Halbwertszeit t_ϵ wurden die Gl. 5 u. 6 benutzt. Die Konstanten C_1 und C_2 wurden entsprechend Tabelle 2 eingesetzt. Die Q_ϵ -Werte wurden den Tabellen von VIOLA und SEABORG (7) entnommen. Unbekannte Werte wurden durch Extrapolation der Tabellenwerte erhalten, da die berechneten Q_ϵ -Werte von MYERS und SWIATECKI (17) Abweichungen bis zu 3 MeV zeigten. Die mittleren Anregungsenergien $\langle E_A(\epsilon) \rangle$ wurden an der ausgezogenen Kurve der Abb. 1 abgelesen.

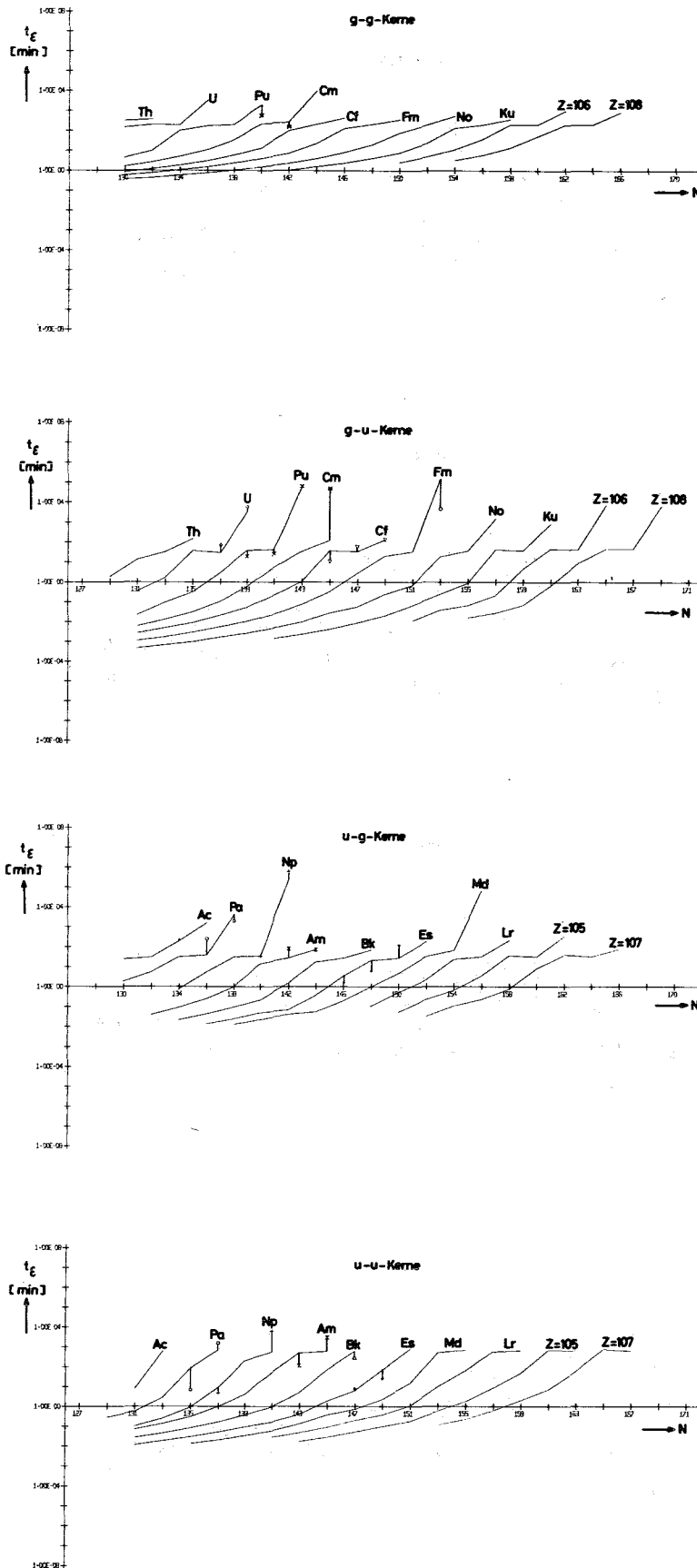


Abb. 8 Partielle Halbwertszeiten t_{ϵ} des Elektroneneinfangs in Abhängigkeit von der Neutronenzahl N der Mutternuklide. Die berechneten Werte der Isotope eines Elements sind durch Geraden verbunden, während die experimentellen durch verschiedene Zeichen dargestellt sind. Bei größeren Abweichungen zwischen berechneten und experimentellen Werten wurden letztere durch senkrechte Striche mit den berechneten Kurven verbunden.

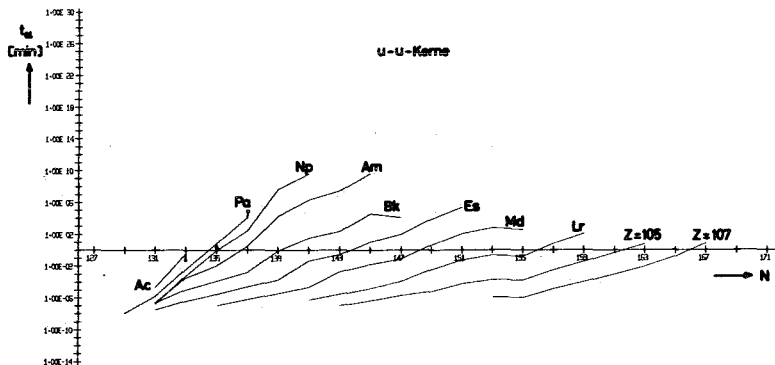
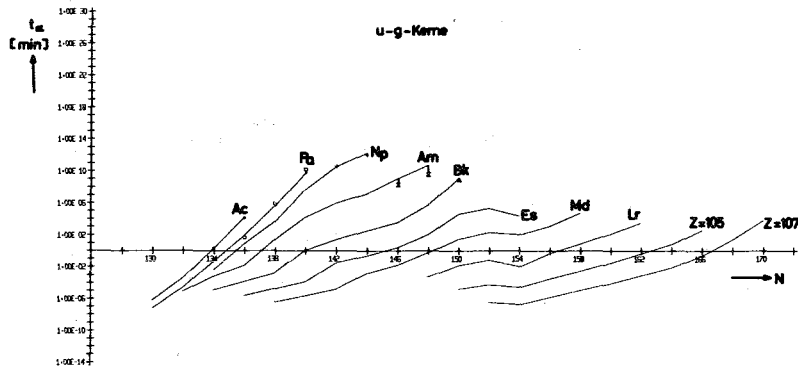
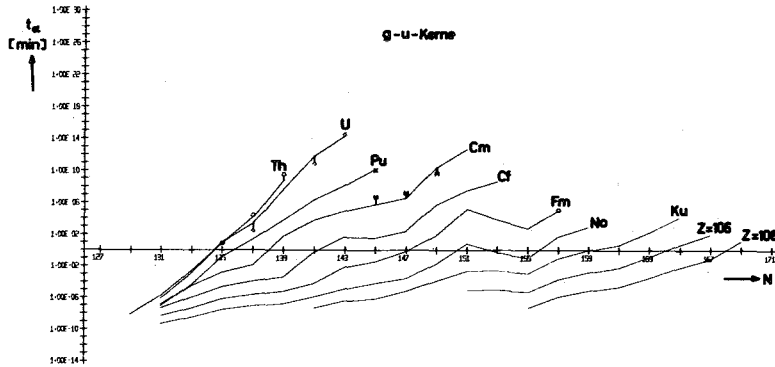
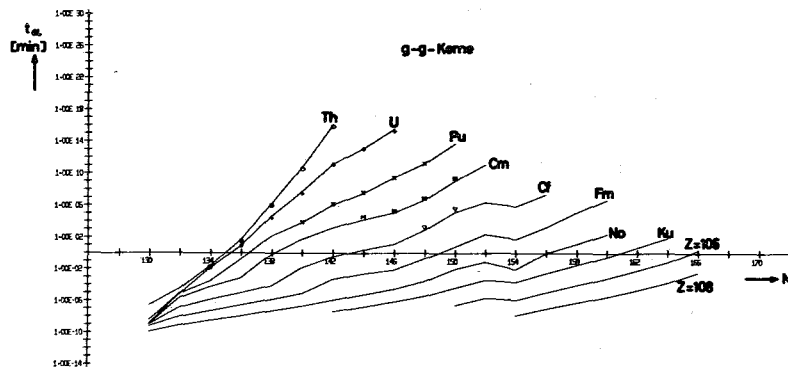


Abb. 9 Partielle Halbwertszeiten t_{α} des α -Zerfalls, gegen die Neutronenzahl N der Mutternuklide. Die berechneten Halbwertszeiten der Isotope eines Elements sind durch Geraden verbunden, während die experimentellen Werte durch verschiedene Zeichen dargestellt sind. Bei größeren Abweichungen zwischen berechneten und experimentellen Werten wurden letztere durch senkrechte Striche mit den berechneten Kurven verbunden.

Die Elektronenbindungsenergien stammen aus (18). Oberhalb der Ordnungszahl $Z = 104$ wurden sie extrapoliert. Die nach Gl. 6 erhaltenen partiellen Halbwertszeiten des K-Einfangs wurden mittels Gl. 5 in ξ -Halbwertszeiten t_{ξ} umgerechnet. Abb. 8 zeigt den Verlauf dieser t_{ξ} -Werte für die Isotope der 4 Kerntypen gegen die Neutronenzahl N der Mutternuklide. Die experimentellen Werte sind durch verschiedene Zeichen entsprechend der Ordnungszahl Z dargestellt.

Für die Berechnung der partiellen α -Halbwertszeit t_{α} wurde Gl. 10 mit den Werten der Tabelle 5 herangezogen. Die Q_{α} -Werte wurden den Tabellen von VIOLA und SEABORG (7) entnommen; darin nicht aufgeführte Werte stammen aus der Arbeit von MYERS und SWIATECKI (17). Die mittleren Anregungsenergien $E_A(\alpha)$ der Tochterkerne wurden den ausgezogenen Kurven der Abb. 4 entnommen. Die berechneten partiellen Halbwertszeiten t_{α} sind in Abb. 9 dargestellt.

Die partiellen Halbwertszeiten t_f der Spontanspaltung (Abb. 7) wurden nach Abschnitt 2.3. berechnet.

Ferner wurde die prozentuale Häufigkeit des Elektroneneinfangs, des α -Zerfalls und der Spontanspaltung berechnet. In Abb. 10 sind für die Isotope der Elemente der 4 Kerntypen diese Häufigkeiten gegen die Neutronenzahl N der Mutternuklide aufgetragen. Zusätzlich sind die experimentell bestimmten Werte eingezeichnet, die eine gute Übereinstimmung mit den berechneten zeigen.

Erläuterungen zu den Abb. 10a, b, c und d:

In diesen Abbildungen sind die prozentualen Häufigkeiten der einzelnen Zerfallsprozesse in Abhängigkeit von der Neutronenzahl N der Mutternuklide aufgetragen. Die experimentellen Werte sind durch verschiedene Zeichen dargestellt, während die berechneten durch Kurven verbunden sind.

o bzw. ————— : Experimentelle bzw. berechnete Werte des α -Zerfalls

□ bzw. - - - - : Experimentelle bzw. berechnete Werte des Elektroneneinfangs

x bzw. : Experimentelle bzw. berechnete Werte der Spontanspaltung

Δ - · - · - · - · : Die experimentellen Werte des β^- -Zerfalls sind durch die strichpunktierte Kurve verbunden und wurden nur der Vollständigkeit halber aufgeführt.

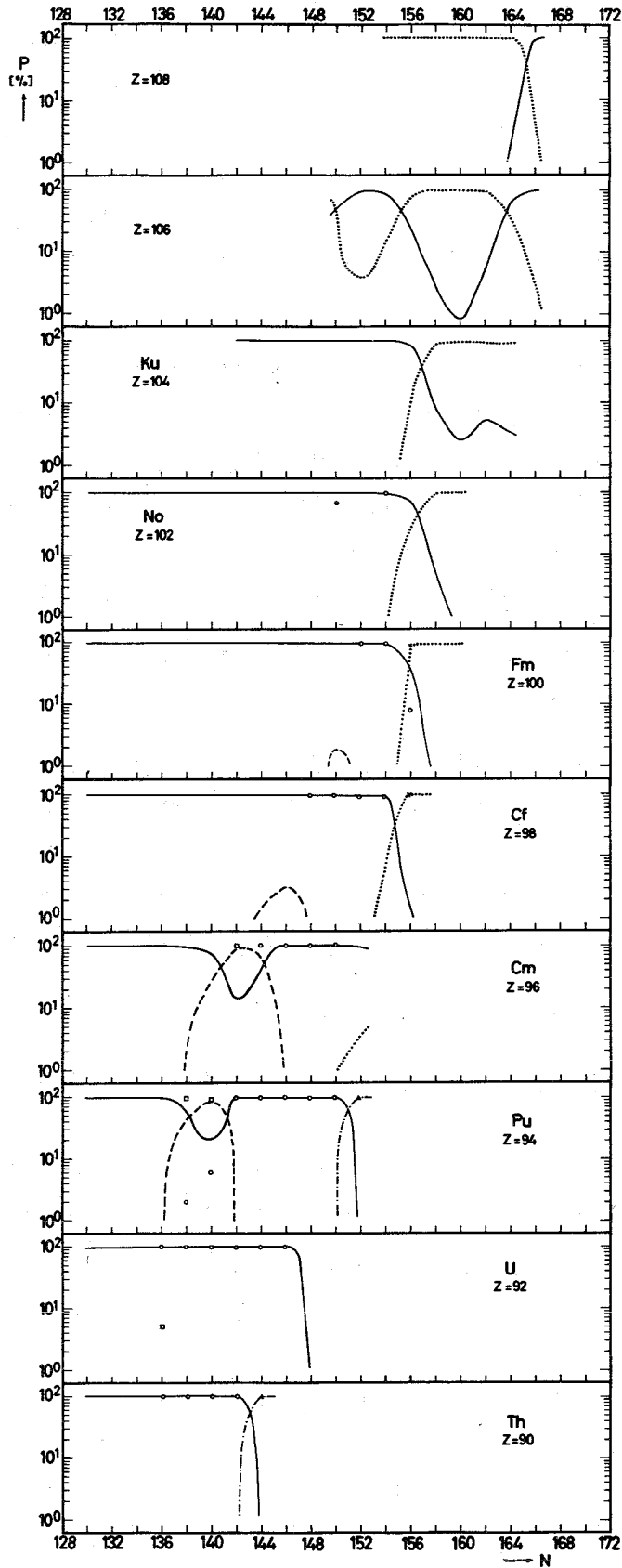


Abb. 10 a Prozentuale Häufigkeiten für g-g-Kerne

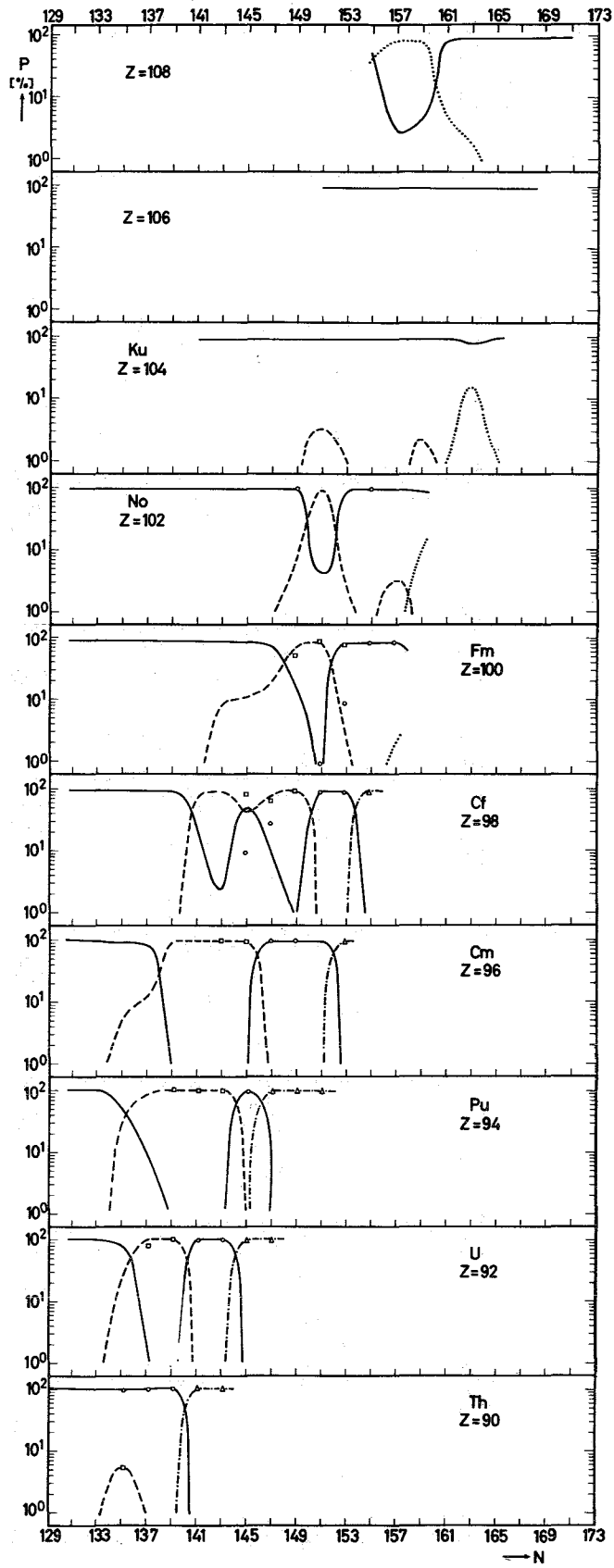


Abb. 10 b Prozentuale Häufigkeiten für g-u-Kerne

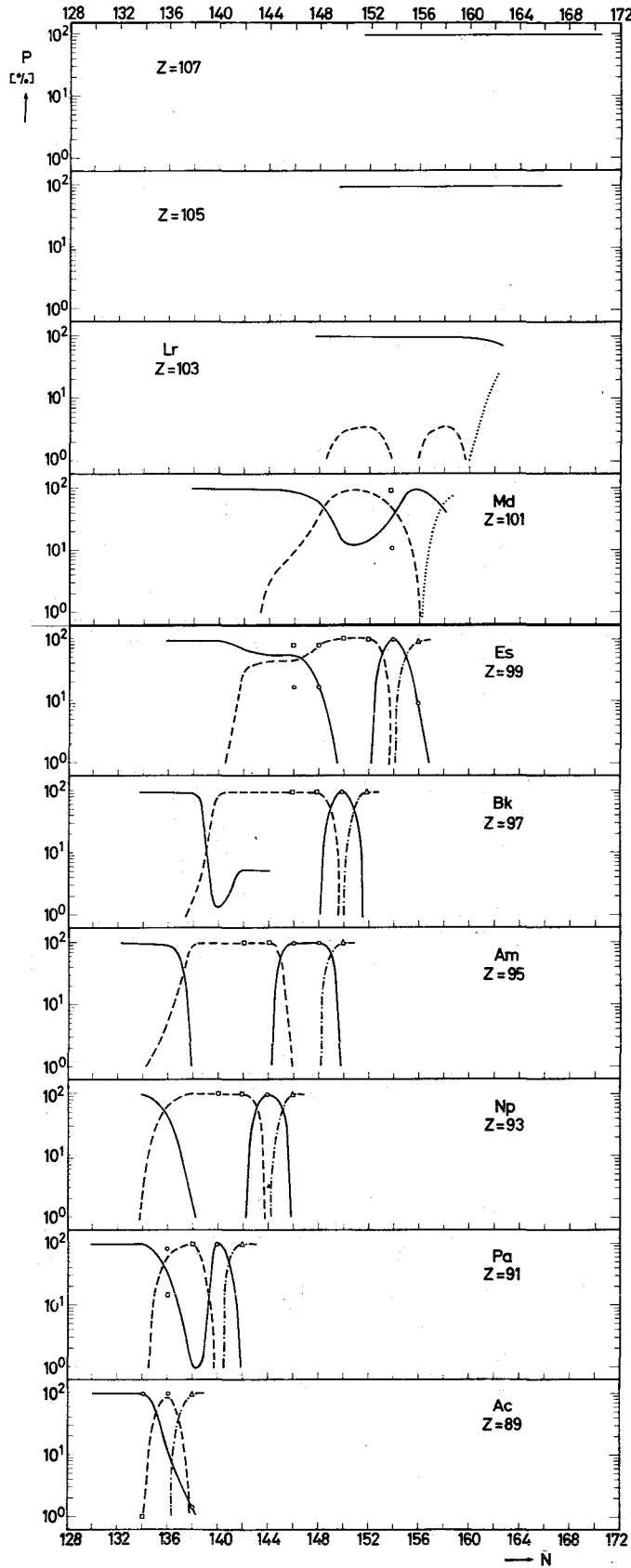


Abb. 10 c Prozentuale Häufigkeiten für u-g-Kerne

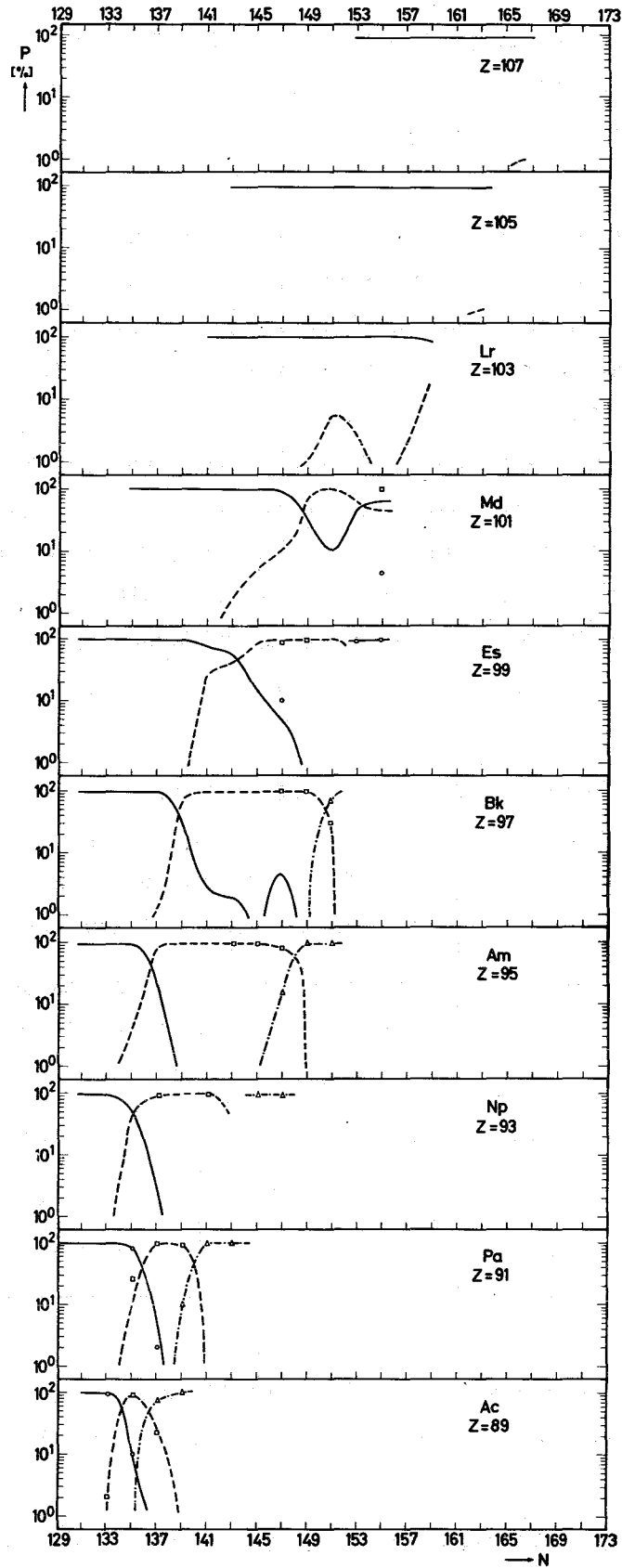


Abb. 10 d Prozentuale Häufigkeiten für u-u-Kerne

Die totalen Halbwertszeiten t wurden nach Gl. 13 berechnet. Ihr Verlauf ist in Abb. 11 für Isotope der verschiedenen Elemente gegen die Neutronenzahl N der Mutternuklide aufgetragen.

Abb. 12 zeigt das Verhältnis t_{exp}/t für die verschiedenen Kerntypen. Während bei den g-u-, u-g- und u-u-Kernen kein systematischer Trend zu erkennen ist, steigt das Verhältnis bei g-g-Kernen gegen die Neutronenzahl $N = 152$ an. Dies ist auch zu erwarten, da der Einfluß der magischen Zahl bei der Berechnung nicht berücksichtigt wurde. Wie die Abb. zeigt, weichen bei den g-g-Kernen die Isotope Fm-244 und Cm-240 sowie Cm-241 bei den g-u-Nukliden und Bk-245 und Lr-257 bei den u-g-Kernen beträchtlich vom allgemeinen Verlauf ab. Diese großen Abweichungen sind möglicherweise darauf zurückzuführen, daß bei den genannten Kernen die experimentellen Daten oder die Zuordnung fraglich ist. Die Fehler in der totalen Halbwertszeit t wurden analog zum α - und ξ -Zerfall berechnet und sind in Tabelle 7 als Faktoren aufgeführt.

Tabelle 7 Fehler in der totalen Halbwertszeit t

Kerntyp	Fehler in der totalen Halbwertszeit t für den	
	Einzelwert	Mittelwert
g-g	3,3 (3,2)	1,3 (1,3)
g-u	77 (3,9)	14 (1,5)
u-g	25 (5,0)	6 (1,8)
u-u	3,8 (3,8)	1,7 (1,7)

Die in Klammern angegebenen Fehler erhält man, wenn man die Nuklide Cm-240 und Fm-244 bzw. Cm-241 bzw. Bk-245 und Lr-257 bei der Berechnung nicht berücksichtigt.

Bei g-g-Kernen läßt sich die Genauigkeit noch verbessern, wenn man den in Abb. 12 zu erkennenden Verlauf der Abweichungen heranzieht. Danach lassen sich totale Halbwertszeiten von g-g-Kernen auf einen Faktor 2,1 (Standardabweichung) genau abschätzen.

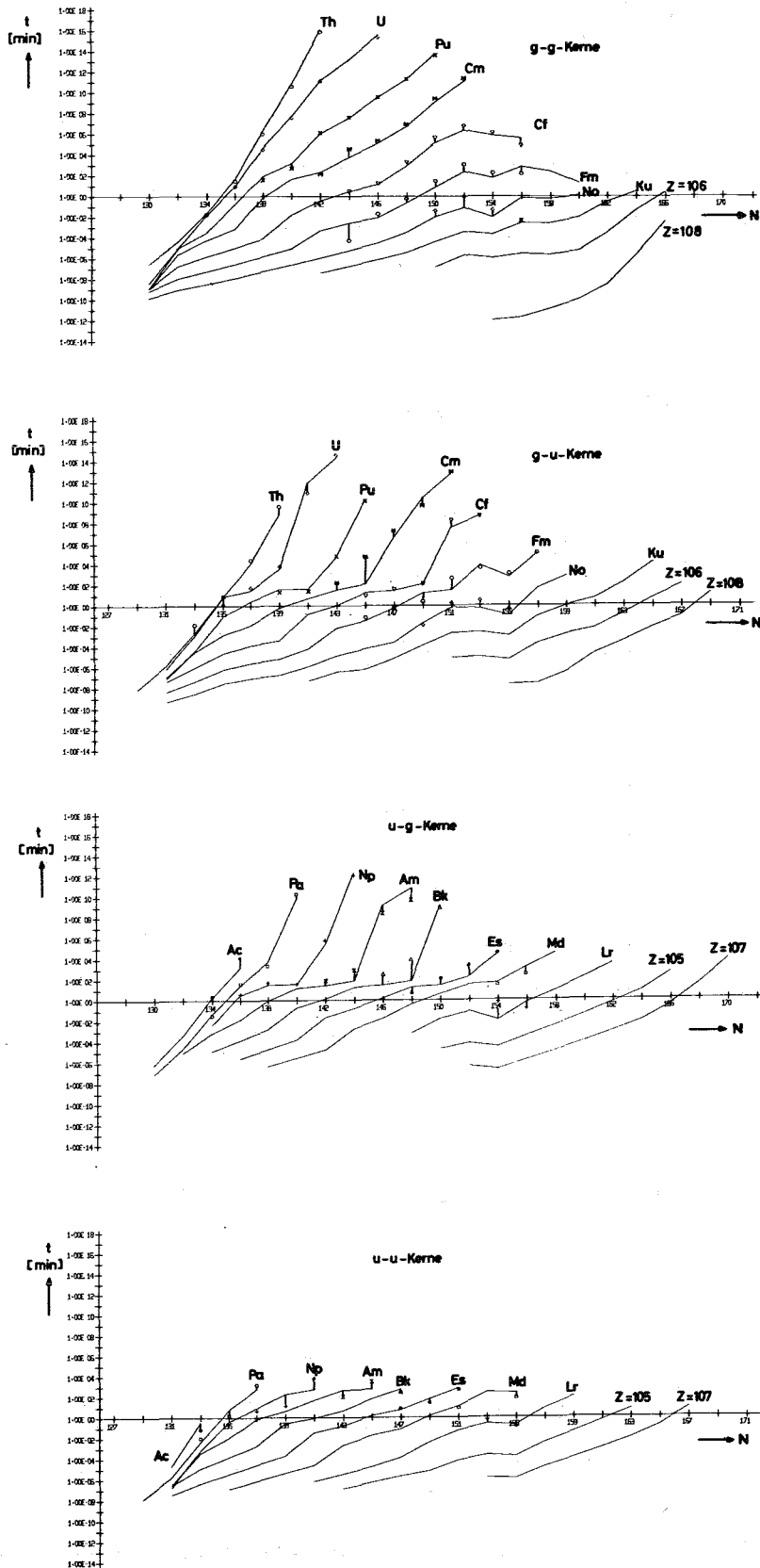


Abb. 11 Abhängigkeit der totalen Halbwertszeit t von der Neutronenzahl N der Mutternuklide. Die berechneten Werte sind durch Geraden untereinander verbunden, während die experimentellen durch verschiedene Zeichen dargestellt sind. Bei größeren Abweichungen zwischen berechneten und experimentellen Werten wurden letztere durch senkrechte Striche mit den berechneten Kurven verbunden.

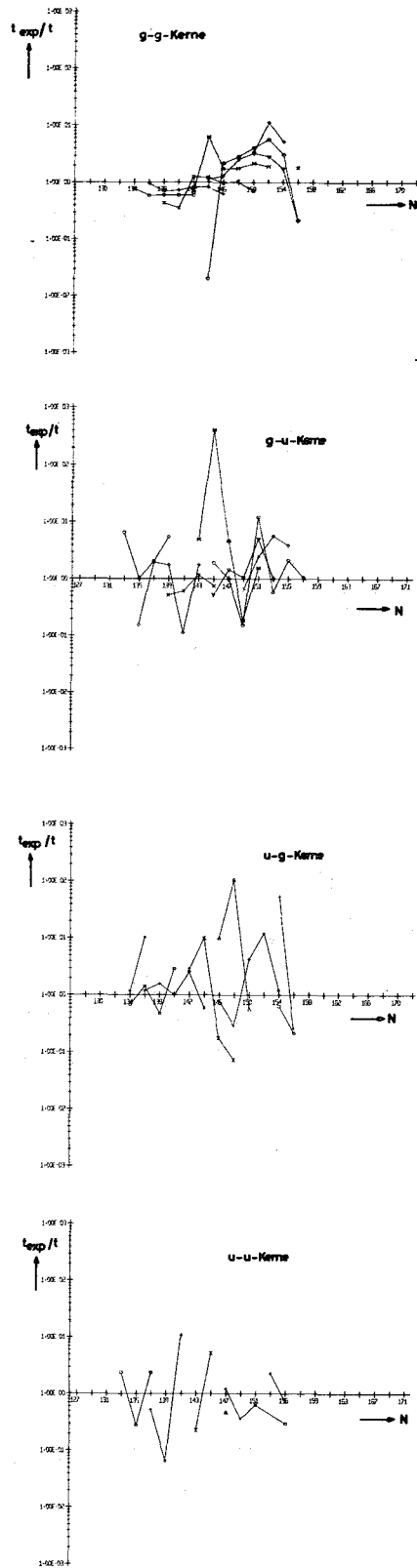


Abb. 12 Verhältnis aus experimenteller und berechneter totaler Halbwertszeit gegen die Neutronenzahl N der Mutternuklide. Isotope eines Elements sind durch Geraden verbunden. Die verschiedenen Zeichen stehen für die verschiedenen Ordnungszahlen (s. Abb. 11).

4. Bestimmung der mittleren Anregungsenergie von Pu-235

Bei der Berechnung der Halbwertszeiten des α -Zerfalls und des Elektroneneinfangs spielt die Kenntnis der mittleren Anregungsenergie (Gl. 4) eine wichtige Rolle. So liegt z.B. bei einem Fehler von nur 100 keV in der mittleren Anregungsenergie und damit im effektiven Q-Wert Q_{eff} der Fehler in der α -Halbwertszeit bei einem Faktor 2. Selbst beim Elektroneneinfang, der weniger stark von der Zerfallsenergie abhängt, ergibt sich derselbe Fehler, wenn die Neutrinoenergie mit einer Unsicherheit von 25 % behaftet ist.

Um eine noch größere Genauigkeit in der Berechnung der totalen Halbwertszeiten unbekannter Kerne zu erreichen, ist es erforderlich, die Kenntnisse über die Systematik der mittleren Anregungsenergien der verschiedenen Zerfallsarten zu erweitern. Leider liegen jedoch nur wenige Daten im Bereich der Isotope der schwersten Elemente vor. Weitere experimentelle Werte sind deshalb von großer Bedeutung.

So ergeben sich bei der Berechnung der bisher kaum untersuchten neutronenarmen Pu-Isotope Pu-232, Pu-233, Pu-234 und Pu-235 Halbwertszeiten, welche um den Faktor 2 bis 3 zu groß sind. Dies deutet darauf hin, daß entweder die der Systematik entnommenen mittleren Anregungsenergien zu groß sind oder daß die der Ableitung von Gl. 6 zu Grunde liegenden Annahmen zu diesen Abweichungen führen. Die Bestimmung der mittleren Anregungsenergie an einem charakteristischen Beispiel sollte zeigen, welche Gründe für diese Abweichungen vorliegen. In der vorliegenden Arbeit wurde deshalb der Zerfall von Pu-235 experimentell untersucht.

4.1. Erzeugung des Nuklids Pu-235

Da es sich bei dem zu untersuchenden Pu-Isotop um einen neutronenarmen Kern handelt, kann er z.B. durch (d,xn)- oder (α ,xn)-Reaktionen erzeugt werden. Wie aus dem Ausschnitt der Nuklidkarte (19) in Abb. 13 zu ersehen ist, kommen als Targetsubstanzen U-233, U-235 und Np-237 in Frage. Aus diesen Möglichkeiten wurde U-233 ausgewählt, da für die (α ,2n)-Reaktion die Anregungsenergie des Compoundkerns und damit die Zahl der Fremdaktivitäten am niedrigsten ist. Außerdem ist die Wahrscheinlichkeit für die Spaltung am kleinsten.

	Am 234? 2,6 m sf			Am 237 ~1,3 h e ⁻ α 6,02	Am 238 60 μs sf	Am 239 1,9 h e ⁻ α 5,78 e ⁻ α 5,35; 0,28	Am 240 0,9 ms sf	Am 241 51 h e ⁻ α 1,00 e ⁻ α 0,90	Am 242 433 a α 5,49; 5,44 ... sf α 0,060; 0,026... e ⁻ α 3,0 e ⁻ α 4+120+620
Pu 232 36 m e ⁻ α 4,59	Pu 233 20 m e ⁻ α 6,31	Pu 234 9 h α 6,20; 1,15	Pu 235 26 m e ⁻ α 5,86	Pu 236 2,85 a α 5,77; 5,72 ... sf e ⁻ α 170	Pu 237 45,6 d α 5,37; 5,65 e ⁻ α 3,83; 0,68 e ⁻ α 2,66	Pu 238 86,4 a α 5,50; 5,46 ... sf e ⁻ α 500 αf 16,8	Pu 239 2,44 · 10 ⁴ a α 5,16; 5,14; 5,11... sf e ⁻ α 265,7 αf 742,4	Pu 240 6600 a α 5,17; 5,12 ... sf e ⁻ α 281 αf <0,1	Pu 241 14,0 a β ⁻ 0,02 α 4,90; 4,85 e ⁻ α 382 αf 1009
Np 231 ~50 m e ⁻ α 4,79	Np 232 ~13 m e ⁻ α 5,24	Np 233 35 m α 5,24 e ⁻ α 0,01-0,56	Np 234 4,4 d e ⁻ α 1,50	Np 235 ~10 d e ⁻ α 5,02	Np 236 >5000 a e ⁻ α 2,80	Np 237 2,14 · 10 ⁶ a α 4,78; 4,76 ... γ 0,087; 0,029... e ⁻ α 170 αf 0,019	Np 238 50,8 h β ⁻ 0,3; 1,2 ... γ 1,03; 0,99 ... e ⁻ α 1600	Np 239 2,35 d β ⁻ 0,4; 0,7 ... γ 0,11; 0,28; 0,23 ... e ⁻ α 35+25; αf <1	Np 240 7,5 m β ⁻ 0,9 γ 0,97; 0,60 e ⁻ α 6,45
U 230 20,8 d α 5,89; 5,82 ... e ⁻ α 25	U 231 4,2 d e ⁻ α 5,46 e ⁻ α 0,926; 0,084 e ⁻ α 400	U 232 71,7 a α 5,32; 5,26 ... sf e ⁻ α 78 αf 77	U 233 1,62 · 10 ⁵ a α 4,82; 4,78 ... e ⁻ α 48,6 αf 527,7	U 234 2,47 · 10 ⁵ a α 4,77; 4,72 ... e ⁻ α 95	U 235 7,20 a α 4,39; 4,36 ... sf γ 0,18; 0,14 ... e ⁻ α 100,5 αf 579,5	U 236 2,39 · 10 ⁷ a α 4,49; 4,44 ... sf e ⁻ α 6	U 237 6,75 d β ⁻ 0,2 ... γ 0,060; 0,21 ... e ⁻ α 100	U 238 4,51 · 10 ⁹ a α 4,20; 4,15 ... sf e ⁻ α 2,73	U 239 23,5 m β ⁻ 1,2; 1,3 ... γ 0,075 ... αf 14
Pa 229 1,4 d e ⁻ α 5,28; 5,67; 5,61	Pa 230 17,5 d e ⁻ α 0,4 e ⁻ α 5,32; 5,30; 4,95; 0,91; 0,44 e ⁻ α 1500	Pa 231 3,25 · 10 ⁴ a α 5,01; 4,95 ... e ⁻ α 0,027; 0,29 ... e ⁻ α 200 αf 0,01	Pa 232 1,32 d β ⁻ 0,3; 1,3 γ 0,77; 0,37; 0,15 ... e ⁻ α 700	Pa 233 27,4 d β ⁻ 0,3; 0,6 ... γ 0,31 ... e ⁻ α 22+21	Pa 234 1,18 m β ⁻ 0,5; 1,4 γ 0,92; 0,85; 1,88; 0,13 ... e ⁻ α 20	Pa 235 24,4 m β ⁻ 1,4 ... γ 0,17; 0,32 ... e ⁻ α 3000	Pa 236 9,0 m β ⁻ 2,1 ... γ 0,64; 0,31 ... e ⁻ α 86	Pa 237 9,1 m β ⁻ 2,3 γ 0,85; 0,53 ... e ⁻ α 1,01	Pa 238 2,3 m β ⁻ 2,1; 2,9 ... γ 0,64; 0,68; 1,01 ...
Th 228 913 a α 5,42; 5,34 ... γ 0,085; 0,22 ... e ⁻ α 123	Th 229 7340 a α 4,85; 4,90; 4,81; 5,05 ... γ 0,20; 0,14 ... e ⁻ α 32	Th 230 7,5 · 10 ⁴ a α 4,68; 4,62 ... e ⁻ α 23	Th 231 25,6 h β ⁻ 0,3 ... γ 0,084; 0,026 ... e ⁻ α 7,4	Th 232 100 a α 4,01; 3,95 ... sf e ⁻ α 7,4	Th 233 22,1 m β ⁻ 1,2 ... γ 0,087; 0,029; 0,45 ... e ⁻ α 1500 αf 15	Th 234 24,10 d β ⁻ 0,2 ... γ 0,093; 0,063 ... e ⁻ α 1,8	Th 235 <5 m β ⁻		

Abb. 13 Ausschnitt aus der Nuklidkarte (19)

Der Q-Wert dieser Reaktion liegt bei - 19 MeV, die Coulomb-Schwelle bei 24 MeV. Aufgrund der (α,2n)-Anregungsfunktion an U-233 (20) wurde mit einer α-Projektilenergie von 28 MeV bestrahlt. Bei dieser Energie liegt der maximale Wirkungsquerschnitt bei 7 mb (20).

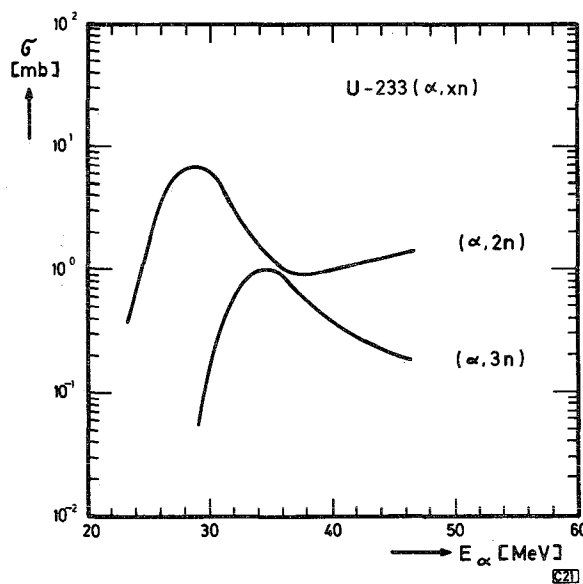


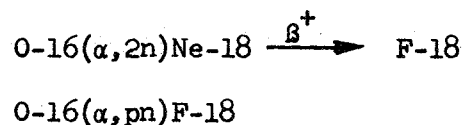
Abb. 14 Anregungsfunktionen der (α,2n)- und (α,3n)-Reaktionen an U-233

Es wurden jeweils 20 mg UO_2 mit angereichertem U-233 (s. Tabelle 8) in einem wassergekühlten Targetkopf (34) mit Strömen von 10 - 15 μA 20 - 30 min im internen Strahl des Karlsruher Isochron-Zyklotrons bestrahlt.

Tabelle 8 Zusammensetzung des Targetmaterials

Isotop	Isotopenhäufigkeit in %
U-233	98,22
U-234	1,111
U-235	0,039
U-236	0,002
U-238	0,624

Bei der Bestrahlung von U-233 mit α -Teilchen entstehen nicht nur die gewünschten Pu-Aktivitäten, sondern über (α,pxn) - und $(\alpha,\alpha xn)$ -Reaktionen auch Isotope der Elemente Neptunium und Uran zusammen mit ihren Tochteraktivitäten. Den Hauptanteil der erzeugten Aktivität stellen jedoch die bei der Spaltung von U-233 gebildeten Spaltprodukte dar. Der Wirkungsquerschnitt für die (α,f) -Reaktion liegt bei 1 barn (21). Da ferner das Targetmaterial als Uranoxid vorliegt, wird aus dem darin enthaltenen Sauerstoff die Aktivität F-18 gebildet, und zwar hauptsächlich durch die beiden Reaktionen:



Außerdem entstehen Fremdaktivitäten aus der als Verpackungsmaterial der Targets substanz benutzten Al-Folie.

4.2. Chemische Trennung der Radionuklide

Die Isolierung des Plutoniums aus dem bestrahlten Targetmaterial erfordert die Abtrennung einerseits von den übrigen Actiniden und andererseits von Spaltprodukten, Fluor und den anderen Fremdaktivitäten. Letztere können zum Teil einfach entfernt werden. Dagegen bereitet die Trennung der Actiniden, besonders Np und Pu, Schwierigkeiten. Mit Hilfe der Flüssig-Flüssig-Extraktion ist es jedoch möglich, gleichzeitig den Forderungen nach einer kurzen Trenndauer und einem großen Dekontaminationsfaktor zu genügen.

4.2.1. Flüssig-Flüssig-Extraktion

Wie von MOORE und HUDGENS (22) gezeigt wurde, ist eine gemeinsame Abtrennung des Np und Pu von anderen Fremdaktivitäten mit Hilfe von 2-Thenoyltrifluoraceton (TTA) möglich. Dieser Komplexbildner reagiert mit Metallionen und bildet neutrale Chelatverbindungen, welche sich in unpolaren Lösungsmitteln lösen. Das sich dabei einstellende Gleichgewicht ist stark pH-abhängig. Dieser Effekt kann zur Trennung der verschiedenen Elemente benutzt werden. So werden z.B. in stark salpetersaurer Lösung vorwiegend Zr, Pa und J extrahiert, während Np und Pu in der wässrigen Phase zurückbleiben. Diese Extraktion wird daher als Vortrennung zur Anreicherung dieser Elemente benutzt. Zur Trennung von Np und Pu aus der Lösung werden beide in den 4-wertigen Zustand überführt und dann gemeinsam aus 1 m salpetersaurer Lösung mit TTA extrahiert. Die Trennung des Pu-Np-Gemisches beruht auf der Nichtextrahierbarkeit (23) des 3-wertigen Plutoniums mit TTA aus 1 m salpetersaurer Lösung.

4.2.2. Ausführung der Trennung

Das bestrahlte U-233 wird mit der Al-Hülle in 5 ml HNO_3 (8 m) und 0,5 ml HCl (10 m) unter Erwärmung aufgelöst. Danach wird mit 5 ml TTA geschüttelt und die wässrige Phase über mit Wasser angefeuchtetes Filterpapier in einen neuen Schütteltrichter überführt und noch einmal mit TTA extrahiert. Diese Vortrennung dient zur Entfernung von Fremdaktivitäten wie z.B. von Zr, Pa und J, welche in die organische Phase übergehen.

Das in der wässrigen Phase verbleibende Plutonium und Neptunium werden zusammen mit Aluminium mit NH_4OH als Hydroxide ausgefällt. Die Lösung wird zentrifugiert und dekantiert.

Der Niederschlag wird in 1 ml HNO_3 (6 m) gelöst und zur Zerstörung von Pu-Polymeren (24) erhitzt. Zur Reduktion zum Pu (III) wird mit 1 ml Hydroxylaminhydrochlorid (1 m) und 2,5 ml H_2O erhitzt. Anschließend wird die Lösung in einen eisgekühlten Scheidetrichter überführt und zur Oxidation mit 2,5 ml NaNO_2 (1 m) versetzt. Pu (IV) und Np (IV) werden mit 5 ml TTA extrahiert. Die organische Phase wird über ein mit Xylol befeuchtetes Filter in einen neuen Scheidetrichter überführt und mit 5 ml HNO_3 (1 m) gewaschen. Danach werden Plutonium und Neptunium mit 5 ml HNO_3 (10 m) rückextrahiert. In der wässrigen Phase, die Pu und Np enthält, werden nach Zusatz von La-Träger die Hydroxide erneut mit NH_4OH gefällt. Dieser Reduktions-Oxidations-Zyklus und die gemeinsame Extraktion der Actiniden werden wiederholt, um die Spaltprodukte quantitativ zu entfernen.

Anschließend wird der Niederschlag in der Hitze mit 1 ml HNO_3 (10 m) gelöst. Zur Trennung von Np und Pu werden unter Zugabe von 2 ml Hydroxylaminhydrochlorid (5 m), 1 ml FeCl_2 und 6 ml H_2O Neptunium in den 4-wertigen und Plutonium in den 3-wertigen Zustand überführt. Danach wird zweimal mit je 6 ml TTA extrahiert, wobei Pu (III) in der wässrigen Phase zurückbleibt. Erneut werden die Hydroxide ausgefällt und nach Zusatz von Flußsäure wird Fluor mit Schwefelsäure abgeraucht. Der Rückstand wird mit 4 ml HNO_3 aufgenommen und die Lösung zur Messung gebracht.

4.2.3. Zeitdauer, Ausbeute und Dekontaminationsfaktor

Zur Ausbeutebestimmung des im vorhergehenden Abschnitts beschriebenen Trennungsganges wurde Pu-239 als Tracer benutzt. Für die Aufnahme der α -Spektren wurden jeweils 5 μl der entsprechenden Fraktionen auf kreisförmigen Kunststoffplättchen eingedampft. Diese waren vorher mit Insulin behandelt worden, um eine gleichmäßige Verteilung zu gewährleisten. Diese Präparate wurden in einer Vakuum-Kammer montiert und die α -Impulse mit einer aus einem 100 μ dicken Si-Oberflächensperrschichtzähler und einem 512-Kanal bestehenden Zählordnung analysiert. Aus den α -Zählraten, die durch Integration der α -Peaks erhalten wurden, ergab sich eine Ausbeute des Trennverfahrens von 60 %.

Um die Güte der Trennung zwischen Pu und Np festzustellen, wurde der Dekontaminationsfaktor bestimmt. Dazu war es erforderlich, die Np-Verunreinigung in der Pu-Fraktion zu messen. Der Np-Tracer wurde durch eine Zyklotron-Bestrahlung eines natürlichen U-238-Targets mit Deuteronen der Energie $E_d = 28$ MeV erzeugt. Bei dieser Bestrahlung entstehen neben Spaltprodukten auch Isotope des Neptuniums, und zwar bevorzugt Np-238 und Np-239. Diese Nuklide zerfallen durch β^- -Zerfall mit einer Halbwertszeit von 2 d. Die dabei auftretenden intensiven γ -Linien von 278 keV und 986 keV wurden zur Aktivitätsbestimmung herangezogen. Aus dem Verhältnis der Np-Aktivitäten in der Ausgangslösung und in der Pu-Fraktion wurde der Dekontaminationsfaktor zu 490 berechnet.

Sowohl Dekontaminationsfaktor als auch Ausbeute lassen sich noch verbessern, allerdings auf Kosten der Trenndauer. Da man jedoch für Pu-235 eine Halbwertszeit von 26 min erwartet, wurden die bei einer Trenndauer von 45 min erreichten Werte als Kompromiß betrachtet.

4.3. Zerfallseigenschaften von Pu-235

Beim Beschuß von U-233 mit α -Teilchen der Energie 28 - 30 MeV fand ORTH (25) eine Aktivität, die mit einer Halbwertszeit von 26 ± 2 min abfiel. Nach seinen Angaben besteht die emittierte Strahlung vermutlich in der Hauptsache aus L-Röntgenlinien mit einem kleinen Beitrag härterer Strahlung. Ferner treten wahrscheinlich einige Konversionselektronen mit Energien größer als 100 keV auf. Es wurde auch eine α -Linie der Energie $E_\alpha = 5,85 \pm 0,03$ MeV mit einer prozentualen Häufigkeit von 0,002 % beobachtet. Diese Aktivität ordnete ORTH dem Plutonium-Isotop Pu-235 zu.

THOMAS et al. (26) bestätigten obige Halbwertszeit, machten aber keine weiteren Angaben über die emittierte γ -Strahlung. Im Gegensatz zu ORTH (25) erwähnen sie keine L-Röntgenlinien, sondern berechnen die totale Zahl der Zerfälle aus der Zählrate der K-Linien und einem L/K-Verhältnis von 0,23 (27). Aus dem α -Verzweigungsverhältnis von $(3,0 \pm 0,6) \cdot 10^{-5}$ ermitteln sie eine partielle Halbwertszeit des α -Zerfalls von $1,7 \pm 0,4$ a.

In einer soeben erschienenen Arbeit untersuchten GORMAN und ASARO (28) erneut den Zerfall des Nuklids Pu-235 und bestimmten die Halbwertszeit zu $24,3 \pm 0,1$ min. Sie beobachteten intensive K- und L-Röntgenlinien und zwei γ -Linien der Energie 34,1 keV und 49,0 keV.

4.3.1. Aufnahme und Analyse der γ -Spektren

Die in Lösung befindliche Aktivität wurde in ein kleines Plastik-Fläschchen abgefüllt und direkt zur γ -Messung verwendet. Als γ -Detektor wurde ein Ge(Li)-Kristall benutzt. Der von der Firma Canberra gelieferte Detektor 7247 hat folgende Eigenschaften: Es handelt sich um einen von 5 Seiten gedrifteten Kristall mit einem effektiven Volumen von 27 cm^3 . Er wird bei einer Sperrspannung von 2200 V betrieben. Dabei liegt der Leckstrom bei $0,5 \cdot 10^{-9} \text{ A}$. Die Energieauflösung des Detektors (Halbwertsbreite) beträgt für Co-57 ($E_{\gamma} = 122 \text{ keV}$) und Co-60 ($E_{\gamma} = 1332 \text{ keV}$) 1,65 keV bzw. 2,7 keV. Der relative Photo-Peak-Wirkungsgrad im Vergleich zu einem $3'' \times 3''$ - NaJ(Tl)-Szintillationsdetektor liegt für Co-60 ($E_{\gamma} = 1332 \text{ keV}$) bei 3,8 %. Für dasselbe Eichpräparat ergibt sich ein Peak/Compton-Verhältnis von 17.

Die Impulse des Detektors werden von einem ladungsempfindlichen Vorverstärker, Canberra 1408C, weiterverstärkt. Dieses Modell besitzt eine rauscharme Eingangsstufe mit Feldeffekt-Transistoren, die im Kryostaten montiert ist. Der Rauschbeitrag von Vorverstärker und Detektor zusammen beträgt 1,4 keV. Das integrierte Signal wird von einem Hauptverstärker Canberra CI geformt (Zeitkonstante $\tau = 2 \text{ } \mu\text{sec}$) und weiterverstärkt. Die Impulsanalyse wird von einem 8192-Kanal-Analysator Geoscience 7000 übernommen und die γ -Spektren mit einer angeschlossenen Magnet-Band-Einheit auf 7-Spur-Bänder geschrieben.

Mit Hilfe verschiedener Rechenprogramme wurden die Daten an den Rechenanlagen IBM 7074 und 360/65 ausgewertet: Die γ -Spektren wurden zuerst geplottet und danach mit dem Programm FABRICIUS (29) die Lage und Intensität der Photopeaks bestimmt. Die angefallenen Daten wurden mit dem Programm RØFAB (30) weiter aufbereitet, und mit den Rechenprogrammen MARTIN (31) und RADAR (32) wurde der Abfall der γ -Peaks analysiert.

4. 3.2. Ergebnisse und Diskussion

Die Bestimmung der Halbwertszeit wurde über den Abfall der K-Röntgenlinien (s. Abb. 15) durchgeführt. Die Computeranalyse ergab eine Halbwertszeit von $25,9 \pm 0,1 \text{ min}$.

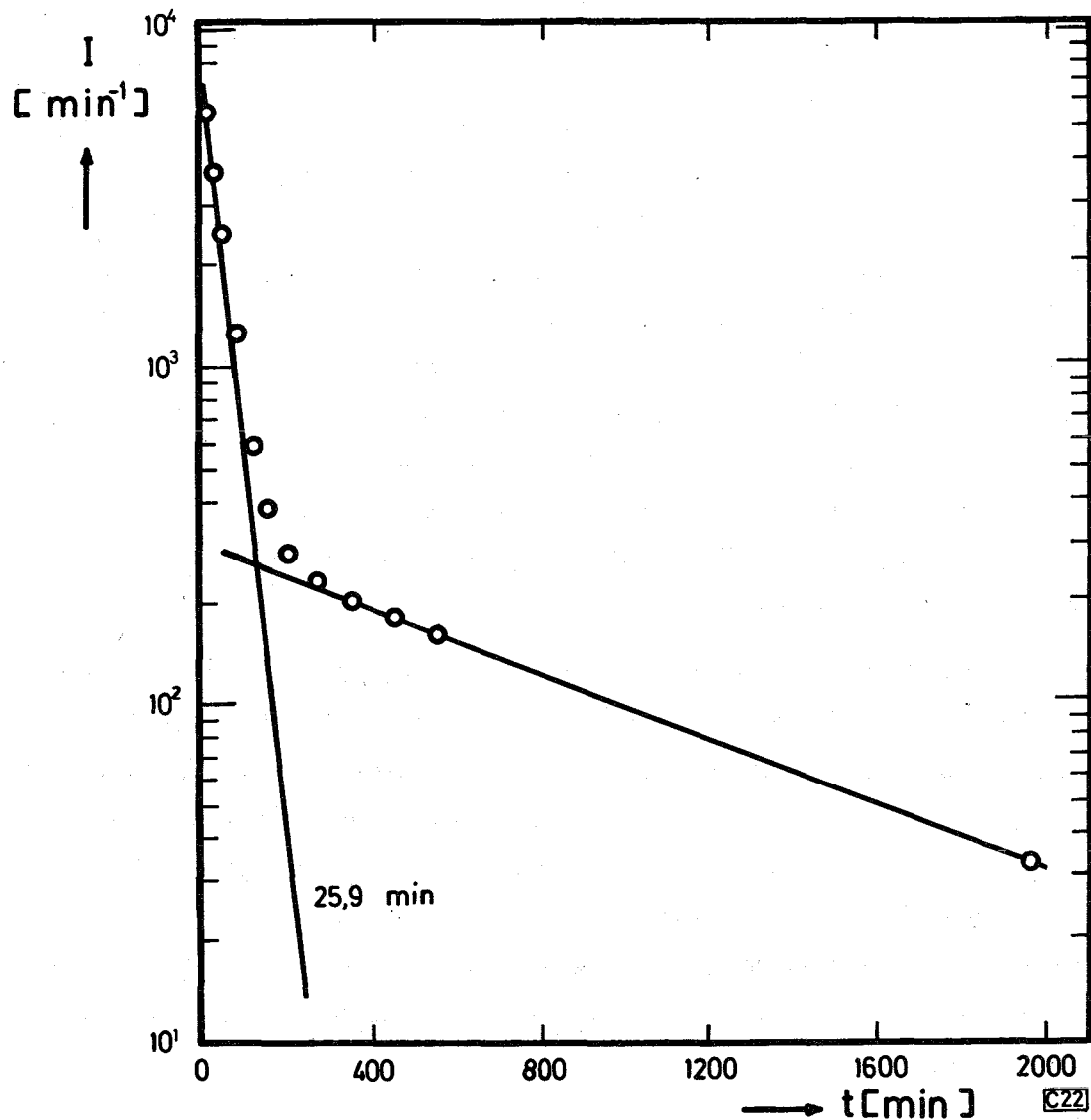


Abb. 15 Abfall der K-Röntgenlinien am Beispiel der K_{β} -Linien

Die Abb. 16 zeigt ein unmittelbar nach der chemischen Trennung aufgenommenes γ -Spektrum, wobei die mit einer Halbwertszeit von 26 min abfallenden γ -Linien durch die Energie gekennzeichnet sind. Die Ergebnisse bisheriger Untersuchungen und die Resultate dieser Arbeit sind in Tabelle 9 aufgeführt. Wie aus dem Spektrum zu erkennen ist, konnte mit der verwendeten γ -Meßanordnung die von GORMAN und ASARO (28) gefundene γ -Linie von 34,1 keV nicht beobachtet werden. Sie wird, falls vorhanden, vom Untergrund verdeckt. Die unterschiedlichen Ergebnisse von GORMAN und ASARO und dieser Arbeit bezüglich der Halbwertszeit von Pu-235 und der

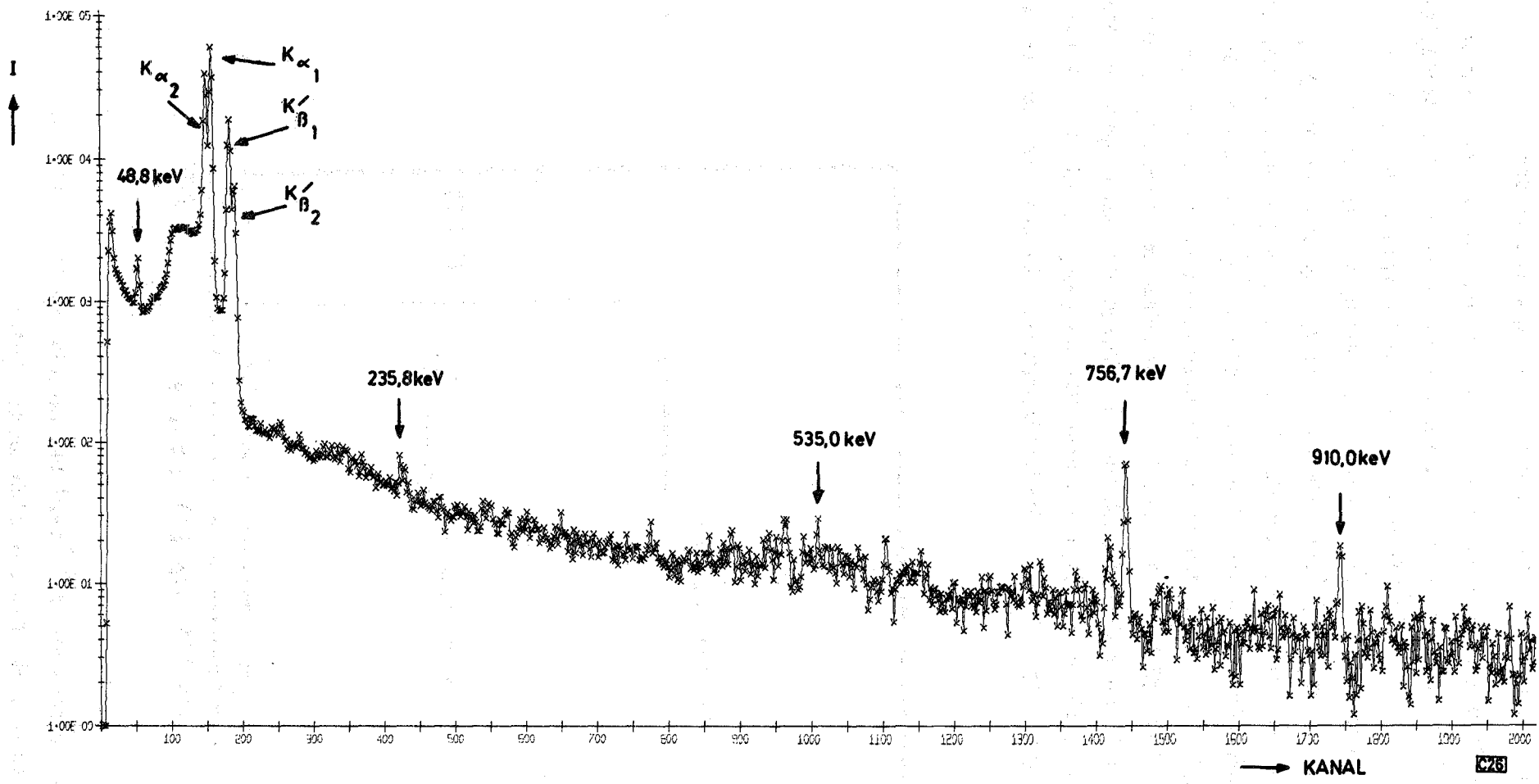


Abb. 16 γ -Spektrum von Pu-235 unmittelbar nach der chemischen Trennung

Intensität der 48,8 keV γ -Linie konnten nicht geklärt werden.

Auf der Grundlage der vorliegenden Untersuchungen und der Systematik der Zerfallseigenschaften der Nachbarkerne wurde versucht, ein Zerfallschema für den Elektroneneinfang von Pu-235 aufzustellen. Die Energieniveaus von Np-235 sollten denen von Np-237 und Np-239 ähnlich sein. Der Grundzustand von Np-235 ist, wie schon früher gezeigt wurde (33), wahrscheinlich wie bei Np-237 und Np-239 ein $5/2^+$ [642]-Niveau. Ebenfalls aus Analogiegründen ergibt sich für Pu-235 ein $5/2^+$ [633]-Zustand. Der erste angeregte Zustand in den beiden Nachbarkernen Np-237 und Np-239 liegt bei ungefähr 32 keV und zerfällt zum Grundzustand überwiegend durch M1-Strahlung mit einer E2-Beimischung (8). Durch die von GORMAN und ASARO (28) gefundene γ -Linie von 34,1 keV kann die Abregung dieses $7/2^+$ -Rotationsniveaus erfolgen. Abb. 17 zeigt die bekannten bzw. extrapolierten Niveaus

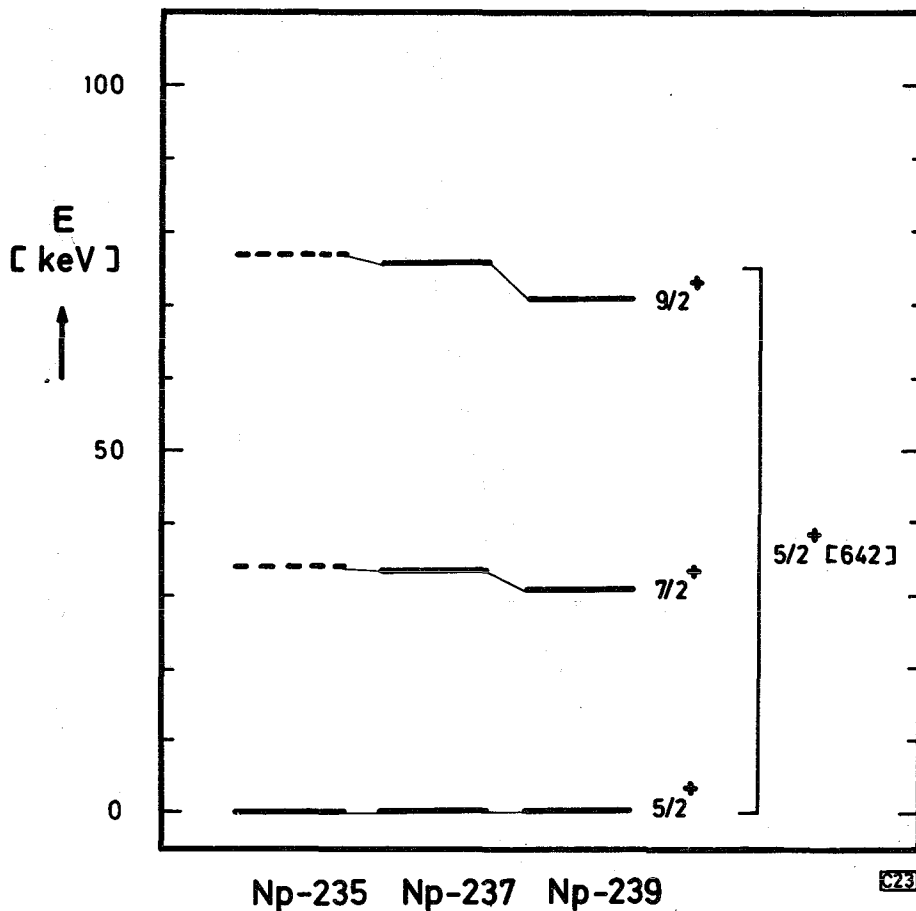


Abb. 17 Rotationsbanden $5/2^+$ [642] bei Np-235, Np-237 und Np-239
(Extrapolierte Niveaus sind gestrichelt).

Tabelle 9 Kernzerfallsdaten von Pu-235

	ORTH (25)	THOMAS et al. (26)	GORMAN und ASARO (28)	diese Arbeit
Zerfall	ξ, α	ξ, α	ξ^*	ξ^*
$T_{1/2}$	26 ± 2 min	26 ± 2 min	$24,3 \pm 0,1$ min	$25,9 \pm 0,1$ min
Röntgen- linien	L	K	K,L	K
Energien der γ -Linien und γ -Intensi- tät pro 100 K-Röntgen- Quanten	-	-	34,1 keV (0,186) 49,0 keV (2,05)	48,8 keV (18,8) 235,8 keV (0,13) 535,0 keV (0,13) 756,7 keV (0,58) 910,0 keV (0,16)

* Der α -Zerfall wurde nicht untersucht.

der Rotationsbande $5/2^+$ [642]. Nach Angaben von GORMAN und ASARO ergibt sich auf Grund der Multipolarität ein theoretischer Konversionskoeffizient von 195 und damit eine Häufigkeit von 24 % für die 34,1 keV-Linie. Übergänge zu höheren Niveaus dieser Bande wurden weder von GORMAN und ASARO noch von uns gefunden. Sie sollten auch wegen der größeren Spindifferenz nicht sehr wahrscheinlich sein.

Die 49 keV-Linie wurde schon früher beim α -Zerfall von Am-239 beobachtet (35). Der Übergang ist vom El-Typ und hat einen theoretischen Konversionskoeffizienten von 1. Nach der experimentellen Untersuchung von GORMAN und ASARO (28) beträgt die Populationshäufigkeit 2 %, nach unseren Messungen 38 % des Elektroneneinfangs von Pu-235. Auch nach eingehenden Untersuchungen konnte keine Erklärung für diese Diskrepanz gefunden werden.

In der Arbeit (28) über den α -Zerfall von Am-239 wurden weitere Übergänge gefunden, die eine $5/2^-$ [523] -Rotationsbande populieren. Die Niveaufolge ist in Abb. 18 für die Kerne Np-235, Np-237 und Np-239 eingezeichnet.

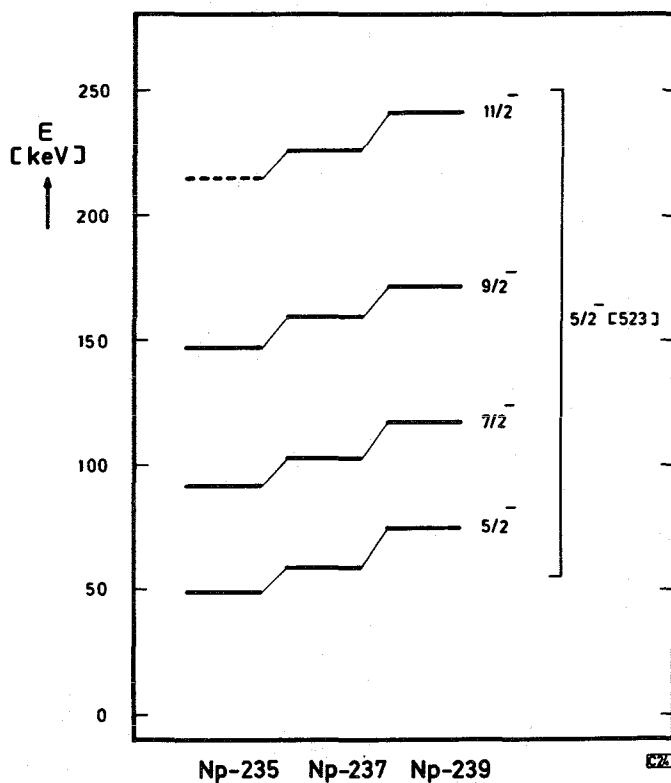


Abb. 18 Rotationsbanden $5/2^-$ [523] bei Np-235, Np-237 und Np-239 (Extrapoliertes Niveau gestrichelt).

Beim Zerfall von Pu-235 durch Elektroneneinfang wurden weder von GORMAN und ASARO noch von uns Übergänge zu höheren Niveaus dieser Bande beobachtet. Diese sollten infolge der größeren Spindifferenz eine wesentlich kleinere Häufigkeiten haben.

Nach GORMAN und ASARO gehen 24 % der Zerfälle von Pu-235 zum 34 keV Niveau und 2 % zum 49 keV-Zustand, während die übrigen 74 % zum Grundzustand von Np-235 führen. Nach unseren Ergebnissen erfolgen 38 % der Zerfälle des K-Einfangs von Pu-235 zum 49 keV-Niveau, höchstens 1 % zu hochenergetischen Niveaus und der Rest zum Grundzustand von Np-235. Von den von uns gefundenen weiteren γ -Linien geringer Intensität kann für die 757 keV-Linie eine mögliche Einordnung angegeben werden. Die lineare Extrapolation der β -Vibrationsniveaus $5/2^-$ von Np-237 und Np-239 ergibt nämlich für Np-235 ein Niveau bei etwa 800 keV. Möglicherweise gehört der Übergang von 757 keV zu diesem angeregten Niveau. Die anderen γ -Linien konnten nicht zugeordnet werden. Vermutlich gehören sie zu Einteilchenniveaus.

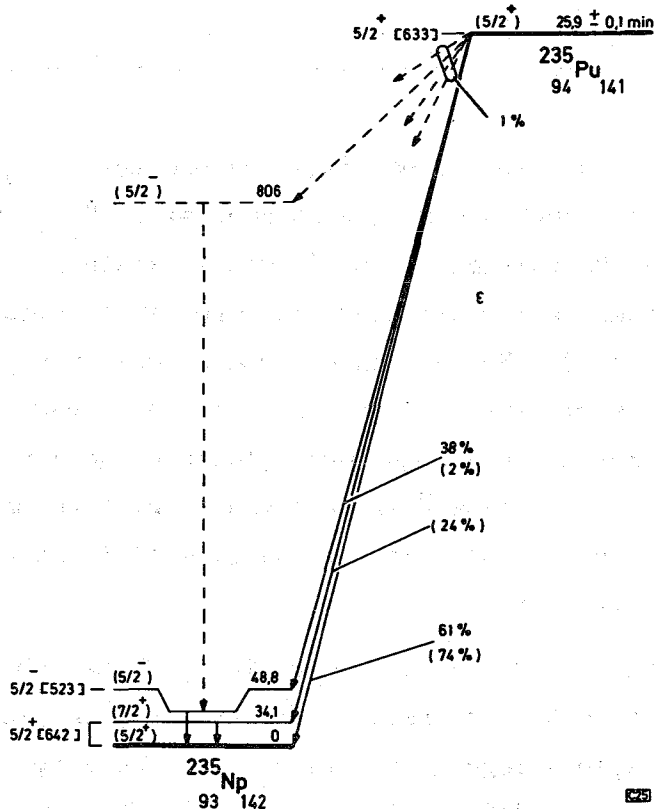


Abb. 19 Vorläufiges Zerfallsschema von Pu-235. Die eingeklammerten prozentualen Häufigkeiten stammen aus der Arbeit von GORMAN und ASARO (28).

Aus den nunmehr vorliegenden Daten über den Zerfall von Pu-235 wurden jeweils die mittleren Anregungsenergien $\langle E_A(\epsilon) \rangle$ des Elektroneneinfangs nach Gleichung 4 ermittelt. Unter Berücksichtigung dieser Werte wurden partielle und totale Halbwertszeiten von Pu-235 berechnet. Die Ergebnisse sind in Tabelle 10 zusammengestellt.

Tabelle 10 Berechnete Halbwertszeiten und prozentuale Häufigkeiten der Zerfallsarten von Pu-235

	$\langle E_A(\epsilon) \rangle$ [keV]	$T_{1/2}$ [min]	T_ϵ [min]	T_α [min]	P_ϵ [%]	P_α [%]
GORMAN und ASARO (28)	9	8,8	8,8	$2,6 \cdot 10^6$	100	$3,3 \cdot 10^{-4}$
diese Arbeit	19	9,2	9,2	$2,6 \cdot 10^6$	100	$3,5 \cdot 10^{-4}$
Anregungsenergie aus der Systematik	320	43	43	$2,6 \cdot 10^6$	100	$1,7 \cdot 10^{-3}$

Aus diesen Werten ersieht man, daß die partielle Halbwertszeit T_ϵ des Elektroneneinfangs und damit auch die totale Halbwertszeit $T_{1/2}$ im Vergleich zur experimentellen Halbwertszeit von 26 min zu klein ist. Außerdem sind die beiden experimentell bestimmten mittleren Anregungsenergien wesentlich niedriger als der der Systematik entnommene Wert von 320 keV. Damit ergab sich eine Halbwertszeit, die um den Faktor 2 zu groß war, während die beiden experimentellen Anregungsenergien eine um den Faktor 3 zu kleine Halbwertszeit liefern. Eine Übereinstimmung zwischen berechneter und experimenteller Halbwertszeit würde eine mittlere Anregungsenergie von 200 keV erfordern.

Die Ergebnisse unserer Untersuchung zeigen, daß die erwähnten Abweichungen in der berechneten Halbwertszeit ihre Ursache nicht in einer Unsicherheit in der mittleren Anregungsenergie haben. Auch zeigt eine Inspektion des Zerfallschemas, daß es sich um erlaubte Übergänge handelt und damit die Voraussetzungen von Gl. 6 erfüllt sind. Um die Abweichungen zu erklären, muß man deshalb annehmen, daß der Zerfall von Pu-235 durch Elektroneneinfang um den Faktor 3 behindert ist.

5. Literaturverzeichnis

- (1) V.E. VIOLA, Jr. and G.T. SEABORG, J. Inorg. Nucl. Chem. 28, 741 (1966)
- (2) T.E. PIERCE and M. BLANN, Nucl. Phys. A106, 14 (1967)
- (3) V.E. VIOLA, Jr. and B.D. WILKINS, Nucl. Phys. 82, 65 (1965)
- (4) E.J. KONOPINSKI, The Theory of Beta Radioactivity, Oxford at the Clarendon Press (1966)
- (5) S.A. MOSZKOWSKI, Phys. Rev. 82, 35 (1951)
- (6) S.J. LIDOFISKY, Nuclear Data Tables IV, 88 (1960)
- (7) V.E. VIOLA, Jr. and G.T. SEABORG, J. Inorg. Nucl. Chem. 28, 711 (1966)
- (8) C.M. LEDERER, J.M. HOLLANDER and I. PERLMAN, Table of Isotopes, Wiley and Sons, New York (1967)
- (9) Nuclear Data, B 1-5 (1966)
- (10) T. ERICSON, Advan. Phys. 9, 425 (1960)
- (11) A.H. WAPSTRA, G.J. NIJGH and R. VAN LIESHOUT, Nuclear Spectroscopy Tables, North Holland (1959)
- (12) H.A. BETHE, Rev.Mod. Phys. 9, 161 (1937)
- (13) R.G. THOMAS, Prog. Theor. Phys. 12, 253 (1954)
- (14) R. TAAGEPERA and M. NURMIA, Ann. Acad. Scient.Fennicae, A.VI.78 (1961)
- (15) C. GALLAGHER and J.O. RASMUSSEN, J. Inorg. Nucl. Chem. 3, 333 (1957)
- (16) E.K. HYDE, I. PERLMAN and G.T. SEABORG, Nuclear Properties of the Heavy Elements, Vol. 2 (1964)
- (17) W.D. MYERS and W.J. SWIATECKI, UCRL-11980
- (18) S. HAGSTRÖM et al. in K. SIEGBAHN, Alpha-, Beta- and Gamma Ray Spectroscopy, Vol. 1, 855 (1965)
- (19) W. SEELMANN-EGGEBERT, G. PFENNIG und H. MÜNZEL, Nuklidkarte, 3. Auflage 1968
- (20) R. VANDENBOSCH, T.D. THOMAS, S.E. VANDENBOSCH, R.A. GLASS and G.T. SEABORG, Phys. Rev. 111, 1358 (1958)
- (21) E.K. HYDE, The Nuclear Properties of the Heavy Elements III, Fission Phenomena, Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, New Jersey, USA (1964)
- (22) F.L. MOORE and J.E. HUDGENS, Jr., Analytical Chemistry, 29, 1767 (1957)
- (23) R. GREENLEE and B.M. WINNER, CN-3676 (1946);
J.R. THOMAS and H.W. CRANDALL, CN-3733 (1944)

- (24) K.A. KRAUS, CN-3399 (1945)
- (25) D.A. ORTH, UCRL-1059 (1952)
- (26) T.D. THOMAS, R. VANDENBOSCH, R.A. GLASS und G.T. SEABORG,
Phys. Rev. 106, 1228 (1957)
- (27) H. BRISK and M.E. ROSE, ORNL-1830 (1955)
- (28) D.J. GORMAN and F. ASARO, NUCLEAR CHEMISTRY DIVISION,
ANNUAL REPORT, UCRL-19503 (1969)
- (29) H. FABRICIUS, Private Mitteilung
- (30) H. RÖHM, Private Mitteilung
- (31) H. MÜNZEL, Private Mitteilung
- (32) H. MÜNZEL und G. PFENNIG, Kernforschungszentrum Karlsruhe,
Externer Bericht 10/67-5
- (33) C.M. LEDERER, J.K. POGGENBURG, F. ASARO, J.O. RASMUSSEN and
I. PERLMAN, Nucl. Phys. 84, 481 (1966)
- (34) H. MÜNZEL, F. MICHEL und F. SCHULZ, Vortrag auf der Tagung für
Kernphysik, Eindhoven/Holland, 6. - 10. April 1970
- (35) F. ASARO, F.S. STEPHENS, Jr., W.M. GIBSON, R.A. GLASS and
I. PERLMAN, Phys. Rev. 100, 1541 (1955)