

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

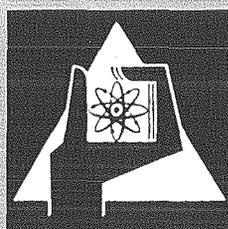
Dezember 1971

KFK 1537

Institut für Radiochemie

**Herstellung und Untersuchung der Neptunium-Isotope
231,232 und 233**

R. Weiss-Reuter



**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

Dezember 1971

KFK 1537

Institut für Radiochemie

Herstellung und Untersuchung der Neptunium-Isotope
231, 232 und 233 *)

von

Rainer Weiss-Reuter

*) Von der Fakultät für
Chemie der Universität
(T.H.) Karlsruhe
genehmigte Dissertation

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe



Zusammenfassung

Der Zerfall der Neptuniumisotope $^{231}_{93}\text{Np}$, $^{232}_{93}\text{Np}$ und $^{233}_{93}\text{Np}$ wurde mit Hilfe der Gammaskopie untersucht. Die genannten Isotope zerfallen vorwiegend durch Elektroneneinfang. Beim Zerfall des $^{232}_{93}\text{Np}$ wurden 24 Gammalinien beobachtet, von denen 21 in ein erweitertes Zerfallsschema eingefügt werden konnten. Beim Zerfall des $^{233}_{93}\text{Np}$ und des $^{231}_{93}\text{Np}$ wurden 21 bzw. 15 Gammalinien beobachtet. Für beide Isotope wurden Zerfallsschemen vorgeschlagen.

Abstract

The decay of $^{231}_{93}\text{Np}$, $^{232}_{93}\text{Np}$ and $^{233}_{93}\text{Np}$ was studied by γ -ray spectroscopy. All three isotopes decay predominantly by electron capture. For $^{232}_{93}\text{Np}$ 24 γ -ray transitions were detected. An extended decay scheme is given. For $^{233}_{93}\text{Np}$ and $^{231}_{93}\text{Np}$ 21 and 15 γ -ray transitions were observed respectively and decay schemes for these isotopes are proposed.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einführung	1
2. Experimenteller Teil	2
2.1. Wirkungsquerschnitte des $^{233}_{92}\text{U}$ für (d,xn)-Reaktionen	2
2.2. Untersuchungen über das Abtrennverfahren	4
2.3. Durchführung der Bestrahlung	6
2.4. Durchführung der chemischen Abtrennung	7
2.5. Die Meßanordnung	8
2.6. Die Auswertung	10
3. Ergebnisse und Diskussion	14
3.1. Neptunium-232	14
3.1.1. Das Zerfallsschema des $^{232}_{93}\text{Np}$	16
3.1.2. Diskussion des Niveauschemas des $^{232}_{92}\text{U}$	18
Grundzustandsrotationsband: $K^\pi=0^+$	18
Oktupol-Vibrationsband: $K^\pi=0^-$ und Beta-	18
Vibrationsband: $K^\pi=0^+$	
Gamma-Vibrationsband: $K^\pi=2^+$	18
$K^\pi=2^-$ -Band	22
Niveau 1098,2 keV	23
Niveau 1133,0 keV	25
$K^\pi=1^-$ -Band	27
Niveau 1193,9 keV	27
3.1.3. Prozentuale Häufigkeit der Übergänge durch	29
Elektroneneinfang zu den einzelnen Niveaus	
3.1.4. Mittlere Anregungsenergie des $^{232}_{92}\text{U}$ und	32
partielle Halbwertszeit für Elektroneneinfang	
3.1.5. Bandenköpfe des Oktupol-Vibrationsbandes, des	33
Beta-Vibrationsbandes und des Gamma-Vibrations-	
bandes für $^{232}_{92}\text{U}$, $^{234}_{92}\text{U}$, $^{236}_{92}\text{U}$, $^{238}_{92}\text{U}$	
3.2. Neptunium-233	35
3.2.1. Das Zerfallsschema des $^{233}_{93}\text{Np}$	37
3.2.2. Diskussion des Niveauschemas des $^{233}_{92}\text{U}$	37

	Seite
3/2+[631]-Band	37
Niveau 298,4 keV	39
Niveau 546,7 keV	40
Niveau 597,1 keV	42
Niveau 320,8 keV	43
3.2.3. Prozentuale Häufigkeit der Übergänge durch Elektroneneinfang zu den einzelnen Niveaus	44
3.2.4. Mittlere Anregungsenergie des $^{233}_{92}\text{U}$ und partielle Halbwertszeit für Elektroneneinfang	46
3.2.5. Bandenköpfe in den Niveauschemen der Kerne $^{233}_{92}\text{U}$, $^{235}_{92}\text{U}$, $^{237}_{92}\text{U}$ und $^{239}_{92}\text{U}$	46
3.3. Neptunium-231	48
3.3.1. Das Zerfallsschema des $^{231}_{93}\text{Np}$	49
4. Literaturverzeichnis	52

1. Einführung

Im Jahre 1950 berichteten Magnusson, Thompson und Seaborg (1) über die Entdeckung neuer Isotope des Elements Neptunium. Die Autoren untersuchten die Aktivität, welche beim Beschuß von $^{235}_{92}\text{U}$ und $^{233}_{92}\text{U}$ am Berkeley-Zyklotron mit 15-100 MeV Deuteronen entstanden war. Im wesentlichen werden dabei Spaltprodukte gebildet, es entstehen aber auch, wie aus dem in Abb. 1 dargestellten Ausschnitt aus der Nuklidkarte (2) hervorgeht, über (d,xn)-Reaktionen neutronenunterschüssige Neptuniumisotope. Die Autoren trennten Neptunium chemisch von der bestrahlten Probe ab. Aus der Analyse der Abfallskurve der beobachteten α -, Röntgen- und Gammastrahlung ergaben sich drei neue Aktivitäten mit Halbwertszeiten von 36 min, 13 min und 50 min. Sie ordneten diese Aktivitäten den Isotopen $^{233}_{93}\text{Np}$, $^{232}_{93}\text{Np}$ und $^{231}_{93}\text{Np}$ zu. Außer den α -Energien für $^{231}_{93}\text{Np}$ und $^{233}_{93}\text{Np}$ wurden keine weiteren Zerfallsdaten von ihnen veröffentlicht.

	Am 234 [?] 2,6 m			Am 237 4,3 h	Am 238 60 μs 1,9 h	Am 237 17,1 h	Am 240 0,9 ms 51 h	Am 241 433 a α 5,49; 5,44 ... sf γ 0,060; 0,026 ... ϵ 3,0 σ 120+620	Am 242 16 ms sf γ ... ϵ ... σ ...
Pu 232 36 m	Pu 233 20 m	Pu 234 91 m	Pu 235 26 m	Pu 236 285 a	Pu 237 456 d	Pu 238 86,4 a	Pu 239 2,44 · 10 ⁴ a	Pu 240 6600 a	Pu 241 14,0 a
Np 231 50 m	Np 232 13 m	Np 233 25 m	Np 234 4,4 d	Np 235 410 d	Np 236 22 h >5000 a	Np 237 2,14 · 10 ⁴ a	Np 238 50,8 h	Np 239 2,35 d	Np 240 7,5 m 67 m
U 230 20,8 d	U 231 4,2 d	U 232 71,7 a	U 233 1,62 · 10 ⁵ a	U 234 0,0056 a 2,47 · 10 ⁵ a	U 235 0,705 a 7,1 · 10 ⁸ a	U 236 2,39 · 10 ⁷ a	U 237 6,75 d	U 238 4,51 · 10 ⁹ a	U 239 23,5 m
Pa 229 1,4 d	Pa 230 17,0 d	Pa 231 3,25 · 10 ⁴ a	Pa 232 1,32 d	Pa 233 27,4 d	Pa 234 1,18 m 6,75 h	Pa 235 24,4 m	Pa 236 9,0 m	Pa 237 9,1 m	Pa 238 2,3 m
Th 228 1,913 a	Th 229 7340 a	Th 230 7,5 · 10 ⁴ a	Th 231 25,6 h	Th 232 1,39 · 10 ¹⁰ a	Th 233 22,1 m	Th 234 24,10 d	Th 235 <5 m		

Abb. 1: Ausschnitt aus der Nuklidkarte (2)

Über die genannten Isotope erschienen in der Zwischenzeit nur noch zwei weitere Arbeiten. So berichtete 1958 Lessler (3) über den Zerfall des $^{233}_{93}\text{Np}$. Der Autor hatte dies Isotop über die Reaktion $^{234}_{92}\text{U}(d,3n)^{233}_{93}\text{Np}$ erzeugt und die beim Zerfall auftretende Gammastrahlung mit Hilfe eines NaJ-Detektors untersucht. Gammapeaks wurden bei 95, 150, 170, 205 und 410 keV beobachtet. Außerdem wurde Gammastrahlung im Bereich von 230-310 keV und von 500-560 keV gemessen. Diese Gammastrahlung rührte von mehreren Peaks her, die nicht aufgelöst werden konnten. Ein Zerfallsschema des $^{233}_{93}\text{Np}$ wurde nicht aufgestellt.

1970 erschien eine Notiz von Hollstein, Münzel, Pfennig und Reuter-Weiss (4) über den Zerfall des Isotops $^{232}_{93}\text{Np}$. Die Autoren hatten $^{233}_{92}\text{U}$ am Karlsruher Zyklotron mit Deuteronen bestrahlt und anschließend Neptunium chemisch abgetrennt. Von 15 beobachteten Gammapeaks wurden die Energien und die relativen Intensitäten bestimmt und die Gammalinien in ein Zerfallsschema eingeordnet.

Im Rahmen der oben erwähnten Notiz (4) blieb eine Reihe von Fragen offen. Deshalb sollten die Arbeiten fortgesetzt und auch auf die benachbarten Isotope $^{233}_{93}\text{Np}$ und $^{231}_{93}\text{Np}$ ausgedehnt werden, um dadurch die Systematik sowohl in den Änderungen der Zerfallseigenschaften dieser Kerne als auch in den Anregungszuständen der entsprechenden Uranisotope besser erkennen zu können.

2. Experimenteller Teil

2.1. Wirkungsquerschnitte des $^{233}_{92}\text{U}$ für (d,xn)-Reaktionen

Die Isotope $^{233}_{93}\text{Np}$, $^{232}_{93}\text{Np}$ und $^{231}_{93}\text{Np}$ können durch Beschuß von Uran mit Deuteronen erzeugt werden. Da mit steigender Deuteronenenergie der Anteil der Spaltreaktionen gegenüber den erwünschten (d,xn)-Reaktionen steigt (5), wurde als Targetmaterial $^{233}_{92}\text{U}$ verwandt. In diesem Fall ist zur Erzeugung von $^{231}_{93}\text{Np}$ nur eine (d,4n)-Reaktion nötig. Bei der Verwendung von $^{235}_{92}\text{U}$ wäre dagegen eine (d,6n)-Reaktion erforderlich, die nur bei einer wesentlich höheren Deuteronenenergie erzielt werden kann. Den günstigsten Wert der Bestrahlungsenergie erhält man aus den Anregungs-

funktionen der entsprechenden Reaktionen. Von Foreman u.a. (6) wurden Wirkungsquerschnitte des $^{233}_{92}\text{U}$ für (d,n)-, (d,2n)- und (d,3n)-Reaktionen gemessen. In der Tabelle 1 sind für verschiedene Deuteronenenergien die Querschnitte der (d,2n)-, der (d,3n)-Reaktion, sowie die Spaltquerschnitte angegeben, die von den genannten Autoren ermittelt wurden.

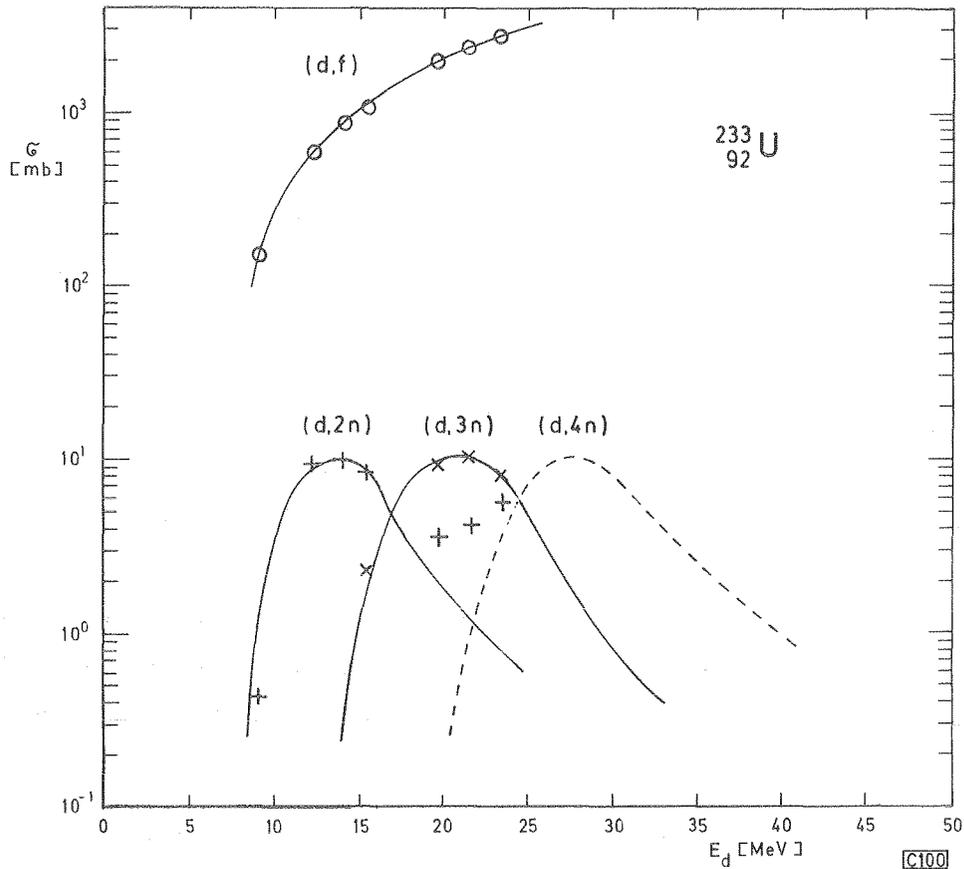


Abb. 2: Anregungsfunktionen für (d,2n)- und (d,3n)-Reaktionen sowie für Spaltung des $^{233}_{92}\text{U}$

Im Bild 2 sind die aus diesen Werten gewonnenen Anregungsfunktionen dargestellt. Der gestrichelt gezeichnete Verlauf der (d,4n)-Anregungsfunktion wurde aus den Kurven für die (d,2n)- und die (d,3n)-Reaktion unter Berücksichtigung des im Landolt-Börnstein (7) aufgeführten Q-Werts abgeschätzt. Die maximalen Querschnitte für die drei Reaktionen liegen, wie aus Bild 2 hervorgeht, bei 13 MeV (d,2n), bei 21 MeV (d,3n) und bei 28 MeV (d,4n).

Tabelle 1: Wirkungsquerschnitte für (d,2n)- und (d,3n)-Reaktionen sowie für Spaltung des $^{233}_{92}\text{U}$

Energie [MeV]	$\sigma(d,2n)$ [mb]	$\sigma(d,3n)$ [mb]	σ_f [mb]
9,0	0,42		125
12,1	9,4		605
14,0	10,1		857
15,4	8,7	<2,3	1093
19,6	3,7	9,7	1502
21,5	4,36	10,9	1687
23,4	5,75	8,2	1861

2.2. Untersuchungen über das Abtrennverfahren

Da bei der Bestrahlung des Urans zum überwiegenden Teil Spaltprodukte entstehen, ist eine möglichst vollständige Abtrennung der Neptuniumisotope von der bestrahlten Probe nötig. Diese Abtrennung ist prinzipiell mittels eines Massentrenners oder auf chemischem Wege möglich. Da die Ausbeute des Neptuniums bei Benützung des Massentrenners aber nur 1 % beträgt, wurde der chemischen Abtrennung der Vorzug gegeben.

Eine schnelle radiochemische Abtrennung des Neptuniums von den übrigen Aktiniden, von Spaltprodukten und von Aktivitäten, die durch die Bestrahlung der Aluminiumhüllung des Targets entstanden sind, ist nach Moore (8) durch die Flüssig-flüssig-Extraktion von vierwertigem Neptunium mit Hilfe von 2-Thenoyltrifluoraceton in Xylol (0,5 m) möglich. TTA bildet mit Metallionen Chelatverbindungen, die in nichtpolaren Lösungsmitteln löslich sind. Die starke pH-Abhängigkeit des Verteilungskoeffizienten dieser Chelatverbindungen kann zur Trennung der Metalle verwendet werden.

Dieses Trennverfahren wurde in Vorversuchen untersucht. Dazu wurde Thoriumfolie mit Deuteronen von 33 MeV bestrahlt und demselben chemischen Abtrennverfahren unterzogen, das für die Isolierung des Neptuniums in den Hauptversuchen vorgesehen war. Da

bei der Bestrahlung von Thorium mit Deuteronen kein Neptunium entsteht, handelt es sich bei den in der "Neptuniumfraktion" verbleibenden Aktivitäten ausschließlich um Fremdaktivitäten. Die bestrahlte Thoriumfolie wurde in 1 ml HCl (10 n) gelöst. Anschließend wurden 2 ml Hydroxylaminhydrochlorid (5 m) + 1 ml FeCl₂ (2 m) + 6 ml H₂O zugegeben. Die Lösung ist somit 1 n an HCl, 1 m an Hydroxylaminhydrochlorid und 0,2 m an FeCl₂. Bei diesem Schritt würde das 6-wertige Neptunium in Np IV umgewandelt. Nach der Reduktion wurde mit 10 ml TTA extrahiert, wobei Neptunium IV in die organische Phase übergehen würde. Die organische Phase wurde mit 1 n HCl (10 ml) gewaschen. Anschließend wurde mit 10 ml HNO₃ (10 n) zurückextrahiert und von der nunmehr in der wässrigen Phase vorhandenen "Neptuniumfraktion" ein Gammastrahlenspektrum aufgenommen. Es zeigte sich, daß an Fremdaktivitäten vor allem Protactinium vorhanden war. Außerdem wurden Spuren von Zirkon und Niob festgestellt. Der ursprünglich vorgesehene Trennungsvorgang mußte daher verbessert werden.

Nach Flegenheimer (9) erfolgt die Extraktion von Protactinium aus verschiedenen Medien mit 0,4 m TTA in der in Bild 3 dargestellten Weise:

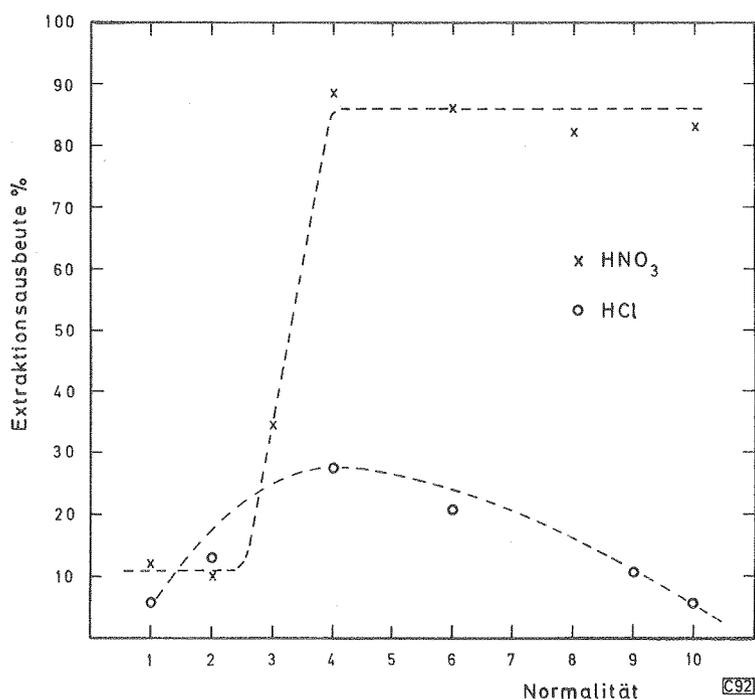


Abb. 3: Extraktionsausbeute für Protactinium in Abhängigkeit von der Normalität des Mediums

Extraktionsversuche mit 0,5 m TTA und 10 n HNO₃ bestätigten die Ergebnisse von Flegenheimer. Es zeigte sich, daß tatsächlich 85 % des Protactiniums und 42-44 % des Niobs extrahiert werden konnten. Der Np-Trennungsgang wurde daher so geändert, daß zuerst eine Extraktion unter oxidativen Bedingungen aus HNO₃-haltiger Lösung erfolgt, um Protactinium und Niob weitgehend zu entfernen. Erst danach schließt sich der Reduktionsschritt und darauf die Extraktion des Neptuniums an.

In weiteren Vorversuchen wurde die Abtrennung von ²³⁹₉₃Np von Uran und Spaltprodukten nach diesem geänderten Abtrennverfahren untersucht. Dazu wurde Natururan, das als UO₂ vorlag, im Reaktor mit Neutronen mit einem Fluß von $4 \cdot 10^{13} \frac{n}{cm^2 \cdot sec}$ 5 Minuten lang bestrahlt. Neben Spaltprodukten bildet sich ²³⁹₉₃Np durch β^- -Zerfall des ²³⁹₉₂U. Nach der chemischen Abtrennung wurde ein Gammaskpektrum des Neptuniums aufgenommen. Es zeigte sich, daß die Neptuniumfraktion außer Np nur noch Spuren von Jod enthielt, das nicht völlig abgetrennt worden war. Diese Aktivitäten stören die Untersuchungen der Gammalinien des Neptuniums nicht, so daß der Trennungsgang in der geschilderten Weise durchgeführt werden kann.

2.3. Durchführung der Bestrahlung

Die Bestrahlung der Targets mit Deuteronen erfolgte am Karlsruher Isochron-Zyklotron. Als Targetmaterial wurde hochangereichertes ²³³₉₂U verwendet, das als Uranoxid UO₂ pulverförmig vorlag. Die Isotopenzusammensetzung des Uranoxides ist in Tabelle 2 wiedergegeben. Zur Herstellung eines Targets wurden 20 mg

Tabelle 2: Isotopenzusammensetzung des Urans

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

des UO_2 mit Hilfe einer Kniehebelpresse zu einer rechteckigen, 3 mm breiten und 6 mm langen Tablette gepresst und diese in 20 μ dicke Aluminiumfolie eingewickelt. Als Targethalterung kam ein eigens für das Karlsruher Zyklotron entwickelter Wasser-targetkopf (10) zur Anwendung. Dieser Targetkopf ist so konstruiert, daß während der Bestrahlung das Urantarget zur Kühlung allseitig von Wasser umspült wird. Eine Targetbahn bringt die Probe automatisch zur Bestrahlungsposition im Innern des Zyklotrons. Die Bestrahlungsenergie wird dadurch eingestellt, daß man das Target auf einen bestimmten Radius im Innern des Zyklotrons bringt. Die Stärke des Strahlstroms ist durch die thermische Belastbarkeit des Targets begrenzt. Höhere Strahlstromstärken als 15 μA hatten ein Zusammenbacken des Targetmaterials zur Folge. Der durch den erhöhten Teilchenstrom erzielte Gewinn an Aktivität ging durch die dadurch notwendig gewordene längere Auflösungszeit des zusammengebackenen Targetmaterials in HCl und HNO_3 vor der chemischen Abtrennung wieder verloren. Nach der Bestrahlung wurde das Target wieder mit der Targetbahn ausgefahren und anschließend in einer heißen Zelle vom Targetkopf abgenommen. Ausschleusen des Targets und Ausspannen in der heißen Zelle nahmen etwa 7 Minuten in Anspruch. Unmittelbar daran schloß sich die chemische Abtrennung des Neptuniums von der bestrahlten Probe an.

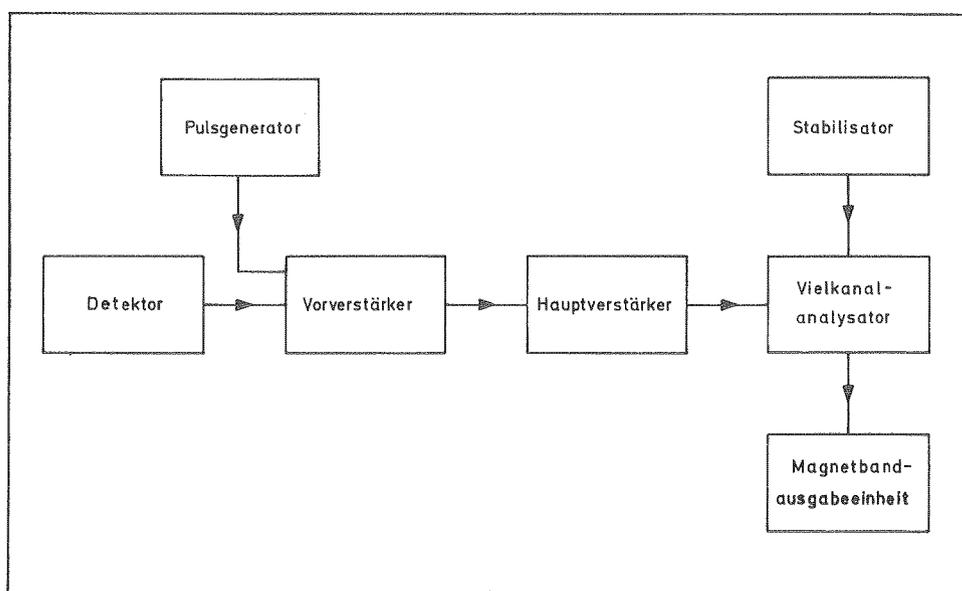
2.4 Durchführung der chemischen Abtrennung

Das bestrahlte Uran wird zusammen mit der umhüllenden Aluminiumfolie in 5 ml HNO_3 (8 m) + 0,5 ml HCl (10 m) gelöst. Die Lösung wird zusammen mit 5 ml TTA in einen Scheidetrichter gegeben und 2 Minuten lang geschüttelt. Bei dieser Trennung gehen hauptsächlich Jod, Zirkon und Protactinium in die organische Phase über. Die wässrige Phase mit dem verbleibenden Neptunium wird anschließend über ein zur vollständigen Phasentrennung mit HNO_3 befeuchtetes Faltenfilter in einen zweiten Scheidetrichter überführt und der Extraktionsvorgang wiederholt. Die wässrige Phase wird in ein Zentrifugenglas gegeben, und tropfenweise wird nun Ammoniak hinzugefügt, bis Hydroxide, darunter Neptunium, ausfallen. Anschließend wird zentrifugiert und abdekantiert. Es schließt sich ein Reduktionsschritt an. Dazu wird der Nieder-

schlag in 1 ml HCl (10 m) unter Erhitzen gelöst und 2 ml Hydroxylaminhydrochlorid (5 m), 1 ml FeCl₂ (2 m) und 6 ml H₂O zugegeben. Das 6-wertige Neptunium wird dabei in Np IV umgewandelt. Darauf wird mit 6 ml TTA 5 Minuten lang extrahiert, wobei Neptunium IV in die organische Phase übergeht. Die wässrige Phase wird verworfen. Die organische Phase wird über ein mit Xylol befeuchtetes Filter in einen weiteren Scheidetrichter gegeben und mit HNO₃ (1 n) gewaschen. Anschließend wird Neptunium mit HNO₃ (10 m) zurückextrahiert. Die das Neptunium enthaltende wässrige Phase wird nochmals in einen Scheidetrichter gegeben und mit TTA gewaschen, wobei nochmals Protactinium und Zirkon extrahiert werden. Zuletzt wird die wässrige Phase über ein mit HNO₃ befeuchtetes Filter in ein Polyäthylenfläschchen überführt. Dieses Fläschchen wurde unmittelbar nach der chemischen Abtrennung zum Meßplatz gebracht.

2.5. Die Meßanordnung

Unmittelbar nach der chemischen Abtrennung wurden von den abgetrennten Neptuniumproben Gammaskpektren aufgenommen. Die Meßanordnung ist in Bild 4 schematisch dargestellt und setzt sich aus einem Detektor, einem Vorverstärker, einem Hauptverstärker und einem Vielkanalanalysator und einer Magnetbandausgabeinheit zusammen.



C90

Abb. 4: Meßanordnung zur Aufnahme von Gammaskpektren

einem Impulshöhenvielkanalanalysator mit Magnetbandausgabeeinheit zusammen. Als Halbleiterzähler wurde ein lithiumgedrifteter Germaniumdetektor verwendet. Folgende Daten wurden von der Lieferfirma Canberra angegeben:

Effektives Volumen: 27 cm³
Ansprechwahrscheinlichkeit: 3,8 % bei 1,33 MeV, bezogen auf einen 3"x3" NaJ(Tl) Kristall
Peak zu Comptonverhältnis : 17:1 bei 1,33 MeV
Auflösung : 2,8 keV (FWHM) bei 1,33 MeV
Sperrschichtspannung : 2 kV
Leckstrom : 0,45 nA
Eigenkapazität : 15 pF

Der Kristall ist auf einem Kühlfinger befestigt, der in einen mit flüssigem Stickstoff gefüllten Kryostaten eintaucht. Direkt an die Detektoreinheit ist ein ladungsempfindlicher, rauscharmer Vorverstärker montiert, dessen Eingangsfeldeffekttransistor etwa auf der Temperatur des flüssigen Stickstoffs gehalten wird. Die Impulse wurden in einem Spektroskopieverstärker mit Pulsformung weiterverstärkt. Der Impulshöhenanalysator bestand aus einem 50 MHz Analog-zu-Digitalwandler und einem Digitalprocessor mit 4096 Kanälen. Die Ausgabe der Kanalinhalt erfolgte auf Magnetband mit einer Ausgaberate von ca. 500 Kanälen pro Sekunde. Vorverstärker, Hauptverstärker und Vielkanalanalysator wurden mit Hilfe eines digitalen Stabilisators in Verbindung mit einem Präzisionsimpulsgeber gegen Verstärkungsänderungen z.B. infolge von Temperaturschwankungen stabilisiert.

Die Auflösung der gesamten Meßanordnung betrug 3,2 keV (FWHM) bei 1,33 MeV. Der Meßbereich wurde folgendermaßen gewählt:

für die Messung von $^{233}_{93}\text{Np}$	20 keV bis 1 MeV ($Q_{\text{EC}}=1,07$ MeV)
$^{232}_{93}\text{Np}$	10 keV bis 2,1 MeV ($Q_{\text{EC}}=2,51$ MeV)
$^{231}_{93}\text{Np}$	10 keV bis 2,1 MeV ($Q_{\text{EC}}=1,88$ MeV)

2.6. Die Auswertung

Die Auswertung aller aufgenommenen Spektren erfolgte an einer IBM 7074- bzw. an einer IBM 360/65/85-Rechenanlage des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Dabei kamen die Programme RAINER, FABRICIUS, ENERGIE, RØFAB, MARTIN, RADAR IV (11) und BRITTA (12) zur Anwendung. Zunächst wurden die gemessenen Spektren mit Hilfe des Programms RAINER gezeichnet. Das Programm FABRICIUS suchte die Kanallagen von Gammalinien und integrierte über die ermittelten Peaks, wobei der Untergrund abgezogen wurde. Halbwertsbreiten und Fehler in Intensitäten und Kanallagen wurden errechnet und sämtliche Ergebnisse auf Lochkarten ausgestanzt. In allen Spektren traten neben den Gammalinien der zu untersuchenden Neptuniumisotope auch die der Neptuniumisotope $^{234}_{93}\text{Np}$, $^{238}_{93}\text{Np}$ und $^{239}_{93}\text{Np}$ auf. Die Gammaenergien dieser Isotope sind mehrfach untersucht und genau bekannt (13), (14), (15). Sie dienten bei allen Messungen als Eichstandards. Das Programm ENERGIE errechnete an Hand dieser Eichstandards zu den von FABRICIUS aufgefundenen Peaks die Energien. RØFAB ordnete anschließend an Hand der von FABRICIUS ausgestanzten Lochkarten die aufgefundenen Peaks nach Energie und bereitete sie zur Übergabe an ein weiteres Programm, MARTIN, vor. Mit MARTIN wurden aus dem Abfall der Intensität der ermittelten Linien mit Hilfe der Methode der kleinsten Fehlerquadrate deren Halbwertszeiten und Intensitäten zum Zeitpunkt des Endes der Bestrahlung berechnet. Die ermittelten Intensitäten wurden bezüglich der Absorption der Gammastrahlung im Probenfläschchen korrigiert und anschließend anhand einer zuvor mit Hilfe von Eichstandards ermittelten Eichkurve für die Ansprechwahrscheinlichkeit im Detektor umgerechnet.

Mit RADAR IV wurden aus dem Abfall der Röntgenlinien des Tochterkerns Uran die Halbwertszeiten der Mutterisotope Neptunium bestimmt. Im Bild 5 ist als typisches Beispiel der Abfall der Röntgenlinien für einen Versuch dargestellt, bei dem alle 3 gewünschten Neptuniumisotope zugleich erzeugt worden waren. Das Programm BRITTA schließlich errechnete aus nicht oder schlecht aufgelösten Doppelpeaks die Intensitäten der Komponenten.

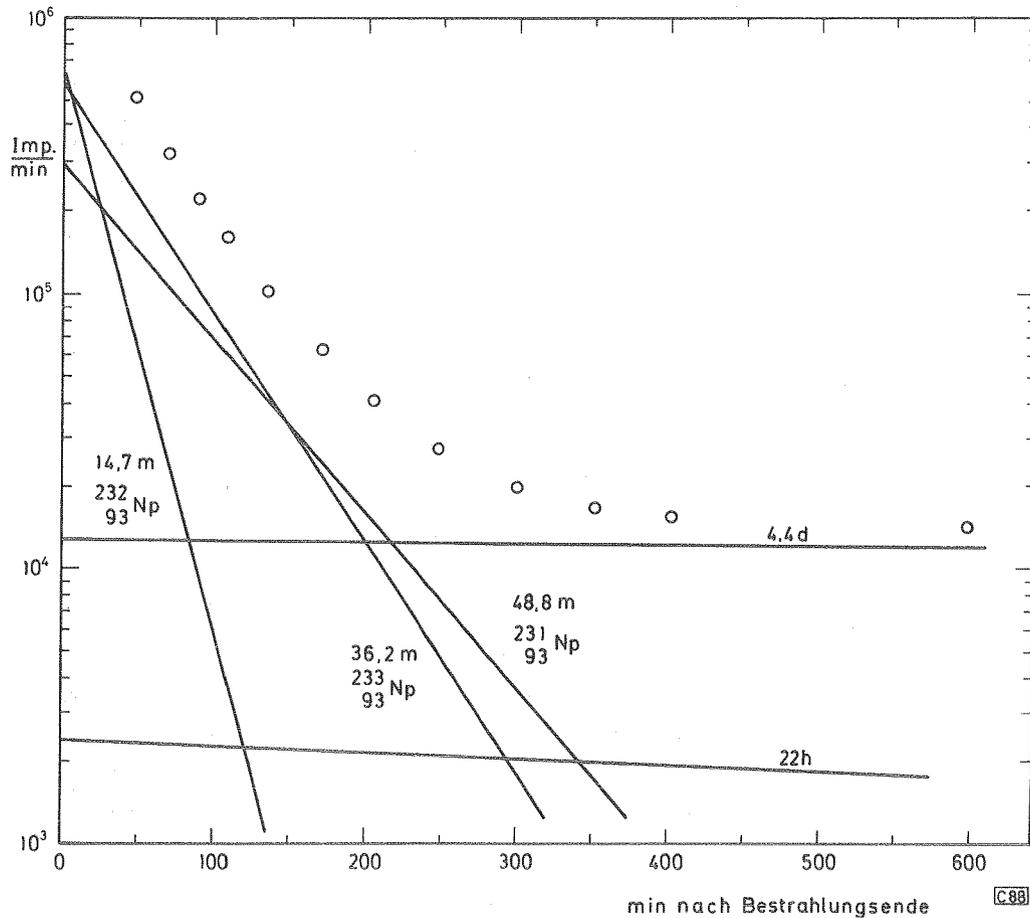


Abb. 5: Abfall der K-Röntgenlinien
des Urans

Zur Datenübergabe von der Magnetbandausgabereinheit an die oben genannten Programme, welche bereits am Institut für Radiochemie benutzt wurden, wurde ein Programm, TAPERREAD, entwickelt. Um die graphische Darstellung der Ergebnisse variieren zu können, wurde ein weiteres Programm, ALBUS 1, hergestellt.

Im Bild 6 sind drei Gammaskpektren übereinander gezeichnet. Das unterste ist typisch für eine Bestrahlung des UO_2 Targets mit Deuteronen einer Energie von 11 MeV, das mittlere für eine von 21 MeV und das oberste für eine von 28 MeV. Daher enthält das unterste Spektrum wegen der verschiedenen Q-Werte für die (d,2n)-, (d,3n)-, (d,4n)-Reaktionen neben Nulleffektpeaks und Peaks

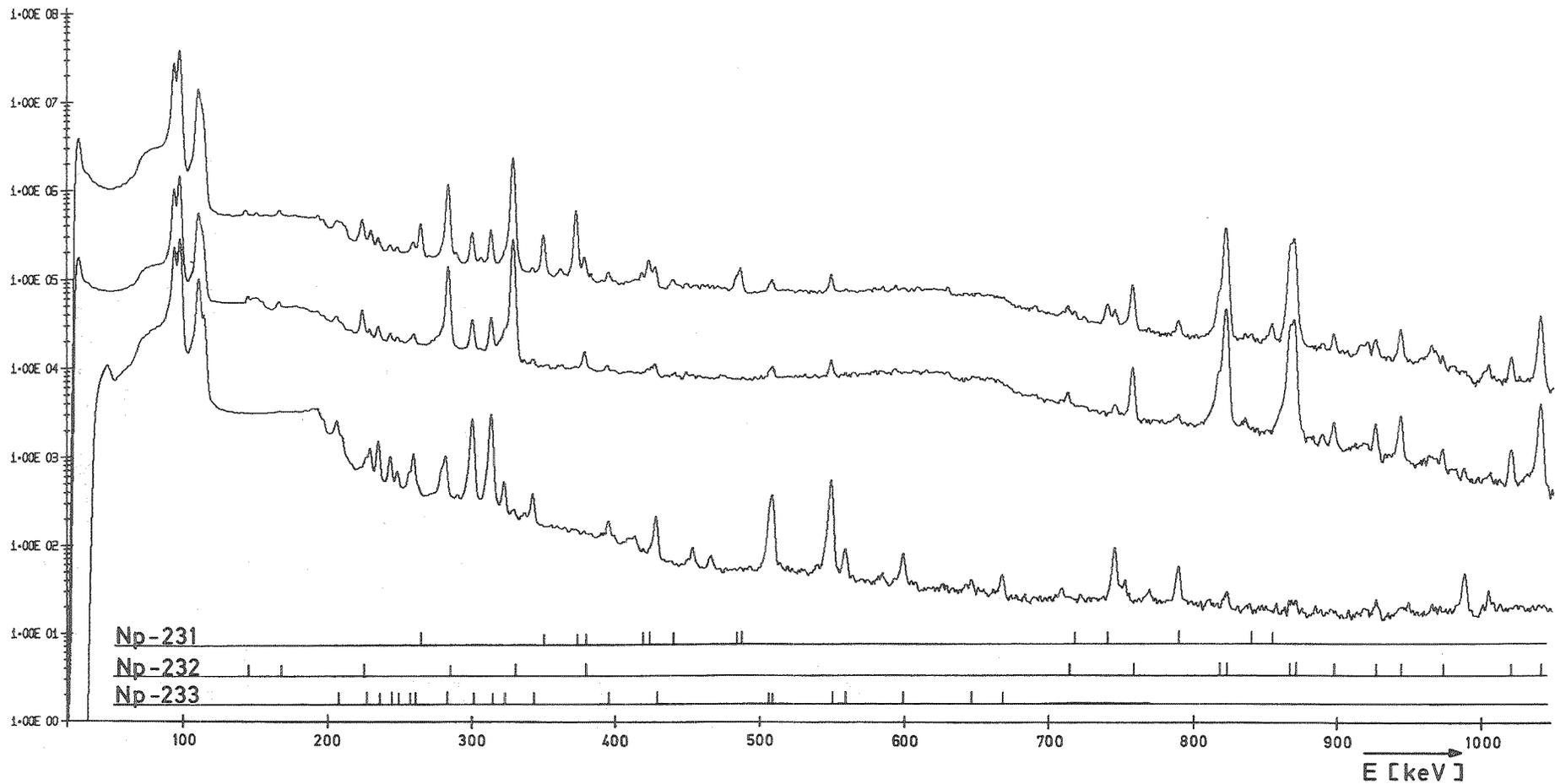


Abb. 6a: Gamma-Spektren der Isotope $^{231}_{93}\text{Np}$, $^{232}_{93}\text{Np}$ und $^{233}_{93}\text{Np}$ für den Energiebereich bis 1,02 MeV.

Die absolute Höhe der Peaks in Bild 6a,b ist willkürlich gewählt. Bei nicht bezeichneten Peaks handelt es sich um Peaks der Isotope $^{234}_{93}\text{Np}$, $^{238}_{93}\text{Np}$, $^{239}_{93}\text{Np}$ und um Untergrundpeaks

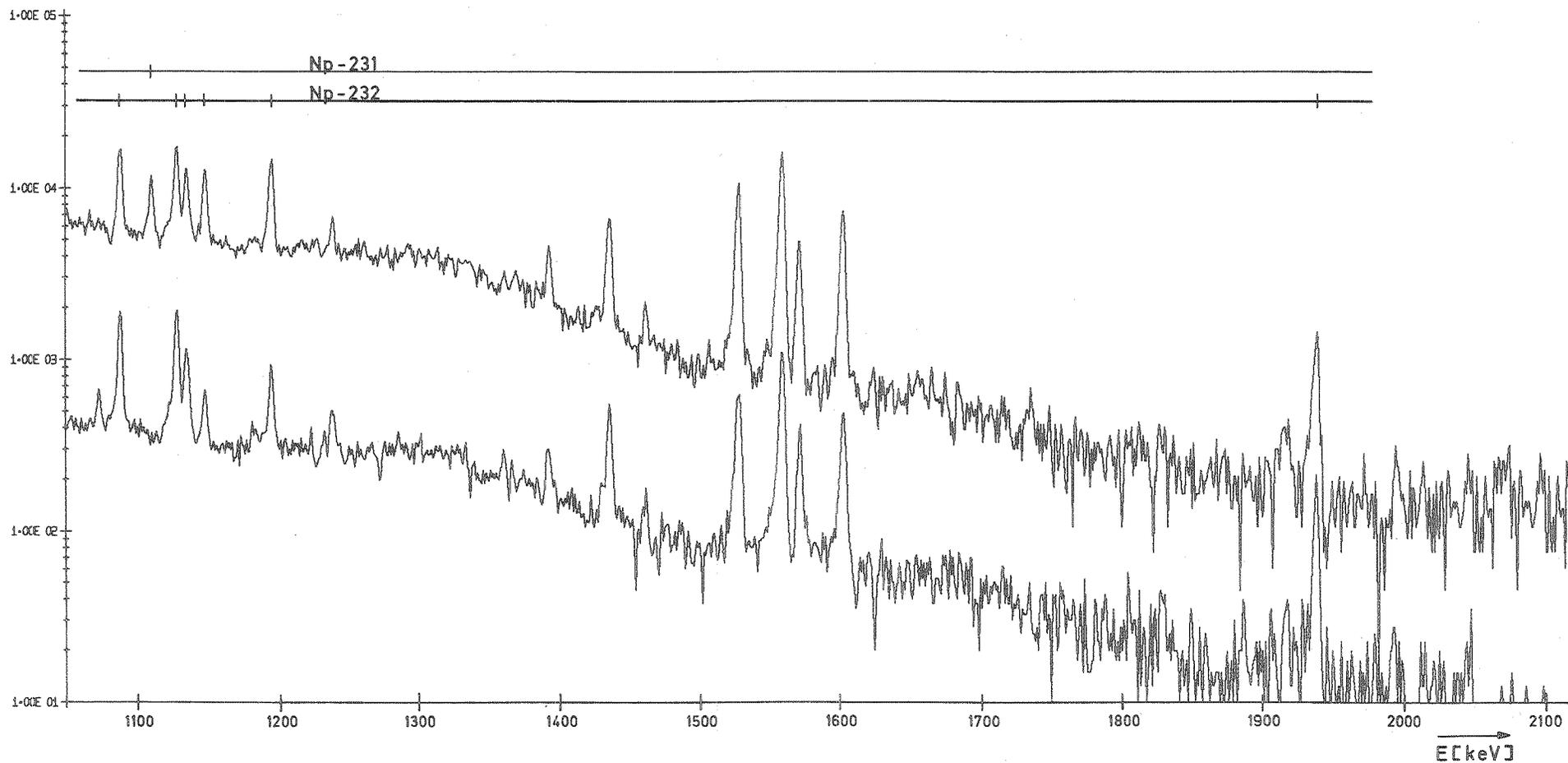


Abb. 6b: Gamma-Spektren der Isotope ${}^{231}_{93}\text{Np}$ und ${}^{232}_{93}\text{Np}$ für den Energiebereich 1,02 MeV bis 2,1 MeV

langlebiger Neptuniumisotope nur solche des Isotops $^{233}_{93}\text{Np}$, das mittlere solche der Isotope $^{233}_{93}\text{Np}$ und $^{232}_{93}\text{Np}$ und das oberste solche der Isotope $^{233}_{93}\text{Np}$, $^{232}_{93}\text{Np}$ und $^{231}_{93}\text{Np}$. Aus dem Vergleich dieser drei Spektren miteinander wurde auf die Zuordnung der Gammapeaks zu einem dieser drei Isotope geschlossen. Außerdem wurde diese Zuordnung noch mit Hilfe der Abfallszeit der Intensität der Peaks bestätigt.

3. Ergebnisse und Diskussion

3.1. Neptunium 232

Die Analyse der Röntgenlinien des Urans ergab eine Halbwertszeit von $14,7^{+0,3}$ min für den Zerfall des $^{232}_{93}\text{Np}$. Dies stimmt gut mit den von Hollstein u.a. (4) bzw. Magnusson u.a. (1) ermittelten Werten überein.

Aus den gemessenen Spektren wurden 24 Peaks ermittelt, die dem Isotop $^{232}_{93}\text{Np}$ zugeordnet wurden. Die Nachweisgrenze für Gammapeaks lag bis auf wenige Ausnahmen, welche in der Diskussion einzeln erläutert werden, bei 0,5 % der Intensität des intensivsten Gammapeaks (327,3 keV). In der Tabelle 3 sind die Ergebnisse für das Isotop $^{232}_{93}\text{Np}$ aufgeführt. Spalte 1 enthält die Energie der Peaks. In der Spalte 2 sind die von Hollstein u.a. angegebenen Energiewerte aufgeführt. Außerdem sind in den Spalten 3 und 4 die entsprechenden Gammaenergien angegeben, die Bjørnholm u.a. (16) und Varnell (17) beim β^- -Zerfall des Protactiniums, der ebenfalls zum Tochterkern $^{232}_{92}\text{U}$ führt, beobachteten. Spalte 5 der Tabelle enthält die auf die Intensität der intensivsten Linie bei 327,3 keV bezogenen Gammaintensitäten.

In der letzten Spalte sind zum Vergleich mit dieser Arbeit die relativen Gammaintensitäten aufgeführt, die von Hollstein u.a. angegeben wurden. Die teilweise beträchtlichen Abweichungen von den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit beruhen darauf, daß bei den genannten Autoren Schwierigkeiten bei der Auswertung der 327,3 keV Linie auftraten. Durch die Verbesserung der Meßanordnung und des Computerprogramms konnten diese Schwierigkeiten

Tabelle 3: Energien und relative Intensitäten der $^{232}_{93}\text{Np}$ -Gammapeaks

γ -Energie [keV]				Relative γ -Intensität *	
diese Arbeit	Hollstein (4)	Björnholm** (16)	Varnell** (17)	diese Arbeit	Hollstein (4)
		47,6 \pm 0,1	47,6		
		109,0 \pm 0,1	109,0		
143,4 \pm 0,5	143,4 \pm 0,5			0,8 \pm 0,2	0,77
165,0 \pm 0,5				0,6 \pm 0,2	
223,6 \pm 0,4	223,2 \pm 0,3			4,3 \pm 0,3	1,8
282,0 \pm 0,4	282,2 \pm 0,3			38 \pm 2	32,8
327,3 \pm 0,3	327,0 \pm 0,4			100	100
377,0 \pm 0,3	376,1 \pm 0,3			2,4 \pm 0,2	1,2
710,7 \pm 0,6	711,4 \pm 1,0	711,6 \pm 1,4	710,1	1,1 \pm 0,2	1,3
755,0 \pm 0,4	755,2 \pm 0,6	757,0 \pm 1,5	754,8	8,1 \pm 0,6	10,1
814,8 \pm 0,4			814,2	7,9 \pm 0,6	104,5
819,5 \pm 0,4	819,7 \pm 0,6	819,6 \pm 1,6	819,1	64 \pm 3	
864,3 \pm 0,5	864,9 \pm 1,1	865,3 \pm 1,7	863,8	39 \pm 2	47,8
867,2 \pm 0,6	867,3 \pm 1,1	868,0 \pm 1,7	866,7	47 \pm 3	91,5
895,1 \pm 0,5	895,2 \pm 0,9	894,8 \pm 1,8	894,3	1,6 \pm 0,2	1,4
924,4 \pm 0,4	924,0 \pm 0,9		923,1	1,8 \pm 0,2	1,4
941,6 \pm 0,4				3,1 \pm 0,5	
970,9 \pm 0,3			969,2	0,6 \pm 0,1	
1016,8 \pm 0,4			1016,9	1,1 \pm 0,1	
1037,4 \pm 0,5	1038,6 \pm 0,6			6,3 \pm 0,4	6,5
1085,4 \pm 0,4	1086,4 \pm 0,6		1085,2	1,9 \pm 0,1	2,0
1126,0 \pm 0,4	1126,4 \pm 0,6		1125,0	2,8 \pm 0,3	2,8
1133,1 \pm 0,4			1132,2	1,7 \pm 0,2	
1146,3 \pm 0,5				0,7 \pm 0,1	
1193,9 \pm 0,6			(1193)	0,7 \pm 0,2	
1936,0 \pm 0,5				0,8 \pm 0,1	

* bezogen auf die Intensität des 327,3 keV-Peaks

** Ergebnisse aus Untersuchungen des β^- -Zerfalls des $^{232}_{91}\text{Pa}$

behalten werden. Außerdem war mit der damals verwendeten Meßanordnung eine Auflösung des Doppelpeaks bei 814,8/819,5 keV nicht möglich, so daß auf nur eine Linie bei 819,7 keV geschlossen wurde. Zur Berechnung der Teilintensitäten der Komponenten der Doppelpeaks bei 814,8/819,5 keV sowie bei 864,3/867,2 keV wurde das Rechenprogramm BRITTA eingesetzt, so daß sich auch hier genauere Werte für die relative Intensität der Teilpeaks ergaben. Infolge der Bestrahlung der Targets im Innern des Zyklotrons war bei allen Versuchen der vorliegenden Arbeit eine wesentlich höhere ${}^{232}_{93}\text{Np}$ -Aktivität erzeugt worden, als bei der Arbeit von Hollstein u.a., so daß eine genauere Auswertung der Gammaskpektren möglich war.

3.1.1. Das Zerfallsschema des ${}^{232}_{93}\text{Np}$

Für den Zerfall des ${}^{232}_{93}\text{Np}$ wurde von Hollstein u.a. unter Berücksichtigung der damals über den Zerfall des ${}^{232}_{91}\text{Pa}$ bekannten Daten ein Zerfallsschema vorgeschlagen. In dieses Schema konnte nur ein Teil der in der vorliegenden Arbeit gemessenen Gammalinien eingeordnet werden. Um weitere Linien einordnen zu können, mußte daher ein verbessertes Zerfallsschema entwickelt werden, wobei zusätzlich die Ergebnisse der Arbeit von Varnell über den β^- -Zerfall des ${}^{232}_{91}\text{Pa}$ berücksichtigt wurden. Dieses neue Schema, das in Bild 7 dargestellt ist, unterscheidet sich von dem bekannten dadurch, daß 5 weitere Niveaus aufgenommen wurden, von denen 3 vom Zerfall des Protactiniums bekannt sind. Damit war es möglich, von den insgesamt 24 Gammalinien bis auf 3 alle in das Zerfallsschema einzufügen. Eine Diskussion aller Niveaus erfolgt im weiteren Teil der Arbeit.

Die drei Gammalinien mit den Energien 377,0 keV, 1016,8 keV und 1936,0 keV konnten nicht in das Zerfallsschema eingeordnet werden. Es ist jedoch in Analogie zu entsprechenden Kernen zu erwarten, daß die 1936,0 keV-Gammalinie einem Übergang von einem Niveau mit der Energie 1983,6 keV oder 1936,0 keV zum 2^+ - oder 0^+ -Niveau des Grundzustandsbandes zuzuordnen ist. Eine Festlegung ist aufgrund der Daten dieser Arbeit nicht möglich, da keine weiteren, von diesem Niveau ausgehenden Übergänge beobachtet wurden, die diese Annahme bestätigen.

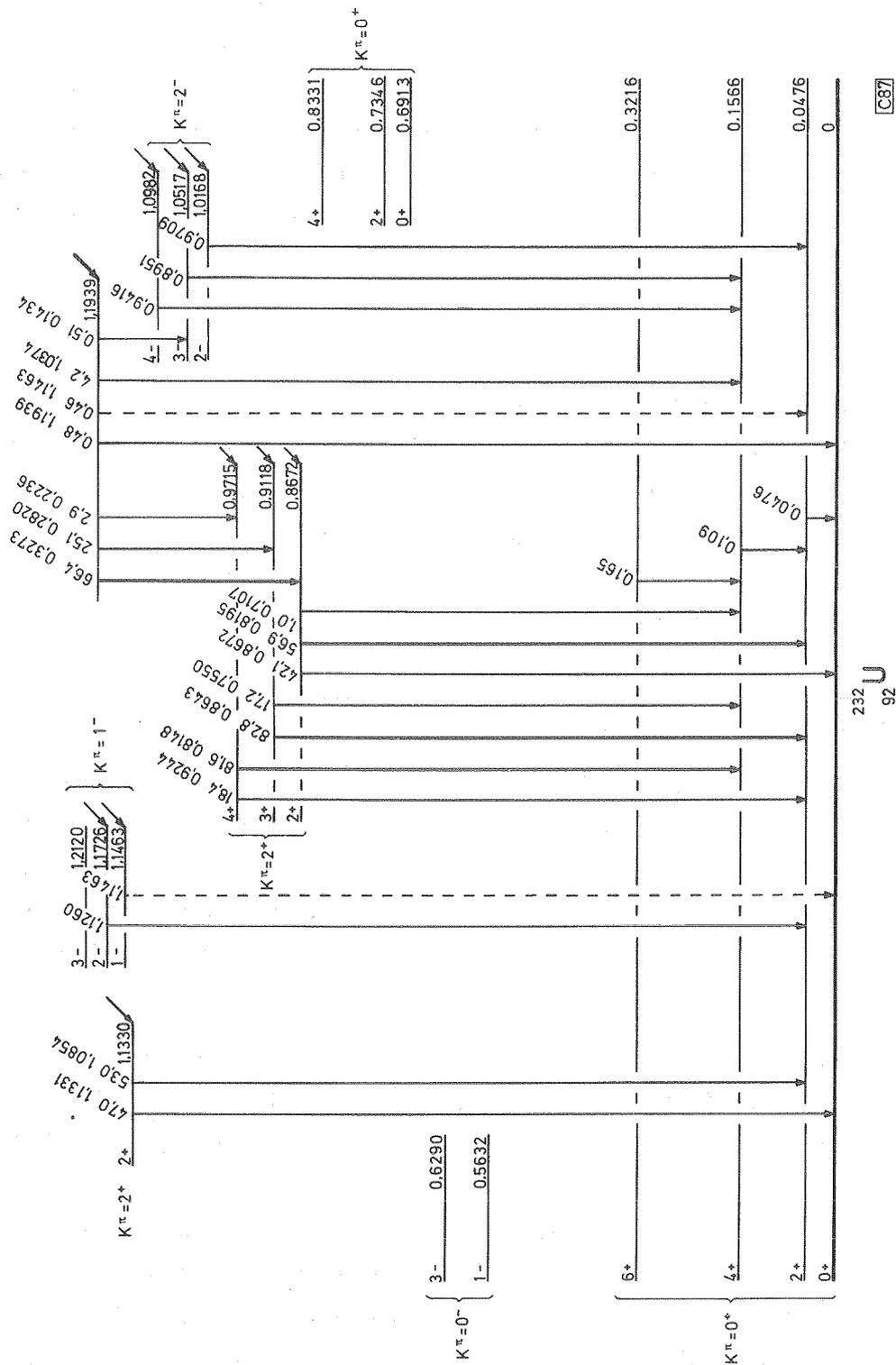


Abb. 7: Zerfallsschema des ^{232}Np

3.1.2. Diskussion des Niveauschemas des ${}^{232}_{92}\text{U}$

Grundzustands-Rotationsband: $K^\pi=0^+$

Die 0^+ -, 2^+ -, 4^+ - und 6^+ -Niveaus dieses Bandes liegen nach Bjørnholm und Varnell bei 0 keV, 47,6 keV, 156,6 keV und 321,6 keV. Von den möglichen Gammaübergängen innerhalb dieses Bandes wurde lediglich der vom 6^+ - zum 4^+ -Niveau mit einer Energie von 165,0 keV beobachtet. Die 109,0 keV-Linie dagegen wird von der $K_{\beta 1}$ -Röntgenlinie des Urans verdeckt, die bei 111,3 keV liegt. Der Nachweis des Übergangs von 2^+ nach 0^+ war deshalb nicht möglich, weil der Konversionskoeffizient für die 47,6 keV-Linie sehr hoch ist.

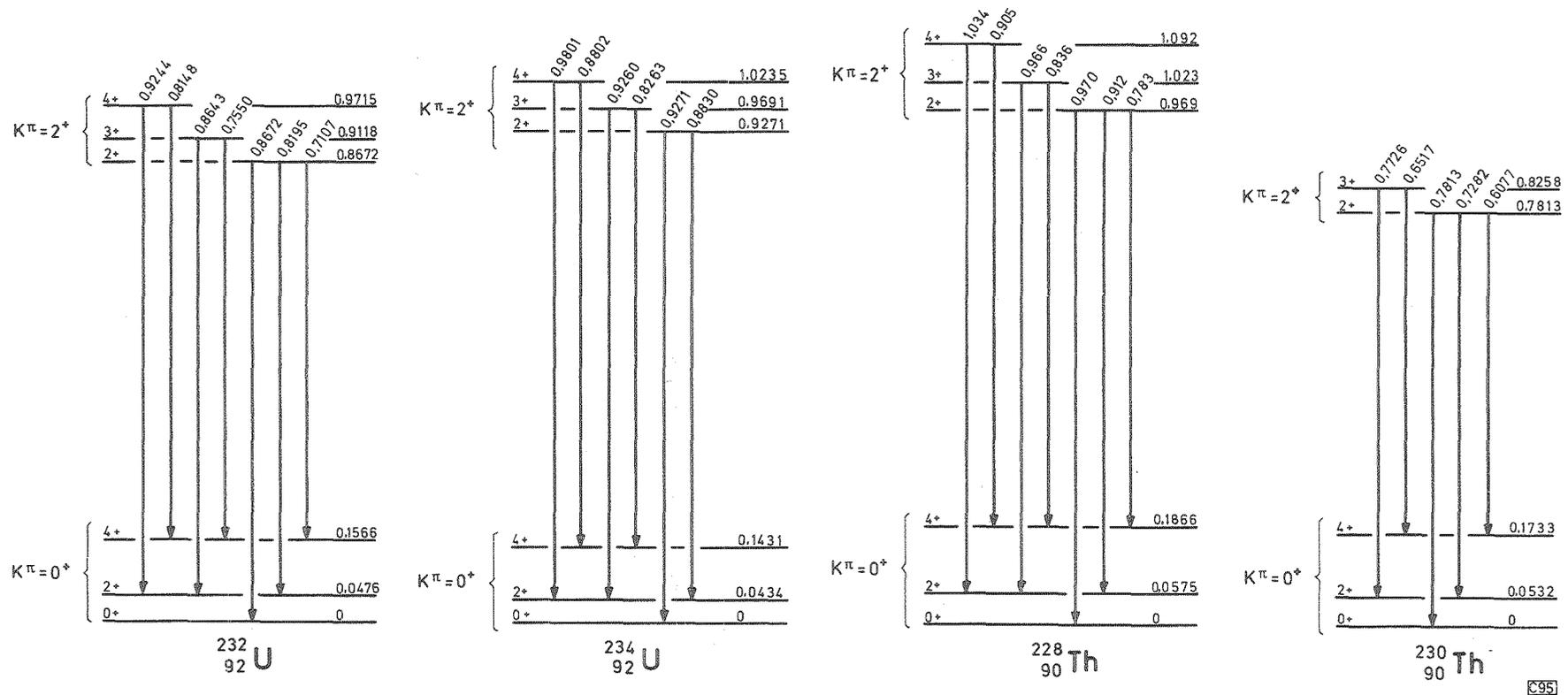
Oktupol-Vibrationsband: $K^\pi=0^-$ und Beta-Vibrationsband: $K^\pi=0^+$

Die vom β^- -Zerfall des ${}^{232}_{91}\text{Pa}$ den Niveaus dieser Bänder zugeordneten Gammalinien wurden beim Zerfall des Neptuniums nicht beobachtet. Die von Bjørnholm und Varnell gut untersuchten Niveaus der oben genannten Bänder werden daher weder direkt durch Elektroneneinfang noch indirekt durch Gammaübergänge von höher gelegenen Niveaus berührt.

Gamma-Vibrationsband: $K^\pi=2^+$

Die von Bjørnholm vorgeschlagenen 2^+ -, 3^+ - und 4^+ -Niveaus werden beim Zerfall des ${}^{232}_{93}\text{Np}$ sowohl durch direkte Übergänge beim Elektroneneinfang als auch durch Gammaübergänge von höher gelegenen Niveaus populiert. Ihre Energien wurden aus den Gammalinien durch Mittelwertbildung zu 867,2 keV, 911,8 keV und 971,5 keV berechnet.

Im Bild 8 sind die Energieniveaus des Gamma-Vibrationsbandes mit den Gamma-Übergängen für ${}^{232}_{92}\text{U}$, ${}^{234}_{92}\text{U}$, ${}^{228}_{90}\text{Th}$ und ${}^{230}_{90}\text{Th}$ dargestellt. Die Daten und Niveauschemen der Kerne ${}^{234}_{92}\text{U}$, ${}^{228}_{90}\text{Th}$ und ${}^{230}_{90}\text{Th}$ wurden der Literatur entnommen (18), (19), (20). Die Energien und die relativen Intensitäten der Gammaübergänge sind in der Tab. 4 wiedergegeben. Dabei wurde jeweils die Summe der Intensitäten der zu einem Niveau gehörenden Gammalinien gleich 100 gesetzt. Man erkennt die große Ähnlichkeit in den relativen Intensitäten dieser Übergänge.



©95

Abb. 8: Gammaübergänge von Energieniveaus des $K^\pi = 2^+$ -Gamma-Vibrationsbandes zum Grundzustandsband für die Kerne $^{232}_{92}\text{U}$, $^{234}_{92}\text{U}$, $^{228}_{90}\text{Th}$ und $^{230}_{90}\text{Th}$

Tab. 4: Gammaübergänge vom $K^\pi=2^+$ -Gamma-Vibrationsband zum Grundzustandsband für $^{232}_{92}\text{U}$, $^{234}_{92}\text{U}$, $^{228}_{90}\text{Th}$, $^{230}_{90}\text{Th}$

Übergang	$^{232}_{92}\text{U}$		$^{234}_{92}\text{U}$ (18)		$^{228}_{90}\text{Th}$ (19)		$^{230}_{90}\text{Th}$ (20)	
	Energie [keV]	rel. Intens.	Energie [keV]	rel. Intens.	Energie [keV]	rel. Intens.	Energie [keV]	rel. Intens.
$2^+ \rightarrow 0^+$	867,2	42,1	927,1	44	970	35	781,3	43
$2^+ \rightarrow 2^+$	819,5	56,9	883,0	56	912,2	62	728,2	55
$2^+ \rightarrow 4^+$	710,7	1,0			783	3	607,7	2
$3^+ \rightarrow 2^+$	864,3	82,8	926,0	72	966	76	772,6	92
$3^+ \rightarrow 4^+$	755,0	17,2	826,3	28	836	24	651,7	8
$4^+ \rightarrow 2^+$	924,4	18,4	980,1	25	1034	19		
$4^+ \rightarrow 4^+$	814,8	81,6	880,2	75	905	81		

Im Gegensatz zu den Ergebnissen von Varnell konnten beim Zerfall des $^{232}_{93}\text{Np}$ nur die Linien 867,2 keV, 819,5 keV und 710,7 keV gefunden werden, die aus dem 2^+ -Niveau dieses Bandes stammen.

Ebenso wurden von den zum 3^+ -Niveau gehörenden Linien nur die 864,3 keV und die 755,0 keV Linie beobachtet. Alle übrigen, von Varnell diesen beiden Niveaus zugeordneten Linien lagen bei den Messungen der vorliegenden Arbeit unter der Nachweisgrenze.

Die theoretischen Übergangswahrscheinlichkeiten von einem Ausgangsniveau mit K-Quantenzahl K_i und Spin I_i zu einem Niveau K_f I_f bzw. K_f I_f , verhalten sich nach Gl. 1 wie die Quadrate der Vektoradditionskoeffizienten. Diese Koeffizienten, auch Clebsch-Gordan-Koeffizienten genannt, wurden einem Tabellenwerk von Rotenberg u.a. (21) entnommen.

$$\frac{B(L, I_i \rightarrow I_f)}{B(L, I_i \rightarrow I_f)} = \frac{\langle I_f L K_i (K_f - K_i) | I_i L I_f K_f \rangle^2}{\langle I_f L K_i (K_f - K_i) | I_i L I_f K_f \rangle^2} \quad \text{Gl. 1}$$

- L : Multipolordnung des Übergangs
- I_i : Spin des Ausgangsniveaus
- I_f, I_f : Spin des Endniveaus
- K_i : K-Quantenzahl des Ausgangsniveaus
- K_f : K-Quantenzahl der Endniveaus

Nach Gl. 1 wurde das Verhältnis der theoretischen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge vom Gamma-Vibrationsband zum Grundzustandsband errechnet. Allgemein gilt für die Gamma-Übergangswahrscheinlichkeit $T_{(L)}$:

$$T_{(L)} = \frac{8\pi(L+1)}{L[(2L+1)!!!]} \frac{1}{2} \frac{1}{\hbar} \left(\frac{\Delta E}{\hbar c}\right)^{2L+1} B_{(L)} \quad \text{Gl. 2}$$

$T_{(L)}$: Übergangswahrscheinlichkeit in sec^{-1}

L : Multipolordnung des Übergangs

ΔE : Energie der ausgesandten Strahlung

$B_{(L)}$: Reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit

c : Geschwindigkeit des Lichtes

$(2L+1)!!! = (2L+1) \cdot (2L-1) \cdot (2L-3) \dots 1$

Vergleicht man zwei Übergangswahrscheinlichkeiten von einem Niveau i zu den Niveaus f und f' , wobei gleiche Multipolordnung L der Übergänge vorausgesetzt wird, so erhält man nach Umformung von Gl. 2:

$$\frac{B_{i \rightarrow f}}{B_{i \rightarrow f'}} = \frac{T_{i \rightarrow f}}{T_{i \rightarrow f'}} \cdot \left(\frac{\Delta E_{i \rightarrow f'}}{\Delta E_{i \rightarrow f}}\right)^{2L+1} \quad \text{Gl. 3}$$

Nach Gl. 3 kann man aus experimentellen Daten das Verhältnis der reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten ermitteln und mit dem aus Gl. 1 bestimmten, theoretischen Wert vergleichen. Dazu wurde für ein betrachtetes Ausgangsniveau die reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit einer Linie gleich 1 gesetzt und alle anderen reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten, die zu Linien desselben Niveaus gehören, auf diese bezogen.

In der Tabelle 5 sind die aus experimentellen Daten gewonnenen und die berechneten relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge vom Gamma-Vibrationsband zum Grundzustandsband einander gegenübergestellt und mit den Ergebnissen von Varnell verglichen. Theorie und Experiment zeigen bei allen Übergängen gute Übereinstimmung.

Tab. 5: Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeiten für E2-Übergänge vom $K^\pi=2^+$ -Gamma-Vibrationsband zum Grundzustandsband

Übergänge	Energie [keV]	Rel. reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit		
		Theorie	diese Arbeit	Varnell (17)
$2^+ \rightarrow 0^+$	867,2	0,7	$0,56 \pm 0,04$	0,58
$2^+ \rightarrow 2^+$	819,5	1	1	1
$2^+ \rightarrow 4^+$	710,7	0,05	$0,035 \pm 0,005$	0,058
$3^+ \rightarrow 2^+$	864,3	2,5	$2,46 \pm 0,22$	1,81
$3^+ \rightarrow 4^+$	755,0	1	1	1
$4^+ \rightarrow 2^+$	924,4	0,34	$0,12 \pm 0,02$	0,28
$4^+ \rightarrow 4^+$	814,8	1	1	1

$K^\pi=2^-$ -Band

Die Niveaus mit den Energien 1016,8 keV und 1051,7 keV mit Spin 2^- und 3^- gehören zu einem $K^\pi=2^-$ -Band, wie von Varnell vorgeschlagen wird. Im Bild 9 sind die $K^\pi=2^-$ -Bänder der Kerne $^{232}_{92}\text{U}$ und $^{234}_{92}\text{U}$

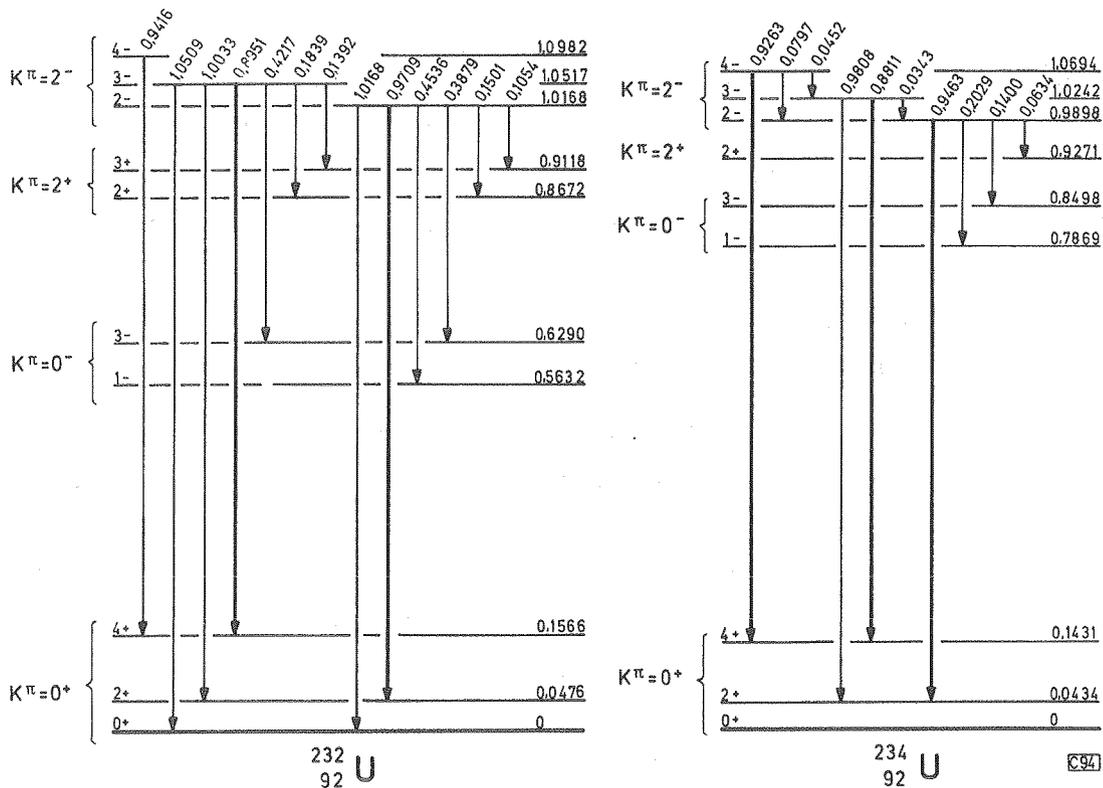


Abb. 9: Gammaübergänge von Niveaus der $K^\pi=2^-$ -Bänder der Kerne $^{232}_{92}\text{U}$ und $^{234}_{92}\text{U}$

und ${}^{234}_{92}\text{U}$ mit ihren Gammaübergängen dargestellt. Beim Zerfall des ${}^{232}_{93}\text{Np}$ werden 2 γ -Peaks mit 970,9 keV und 1016,8 keV beobachtet, die man zunächst als Gammaübergänge vom 2^- -Niveau des $K^\pi=2^-$ -Bandes zum 0^+ - bzw. zum 2^+ -Niveau des Grundzustand-Rotationsbandes einordnen möchte. Beim β^- -Zerfall des ${}^{232}_{91}\text{Pa}$ ist die 970 keV-Linie die intensivste Gammalinie überhaupt. Eine etwa 3000 mal schwächere Linie mit 1016,8 keV Energie wird von Varnell als möglicher Übergang von demselben Energieniveau zum Grundzustand interpretiert. Da sich die Intensitäten der 1016,8 keV- und der 970,9 keV Linie beim Zerfall des ${}^{232}_{93}\text{Np}$ wie 1,8 zu 1 verhalten, ist sichergestellt, daß die 1016,8 keV-Linie beim Zerfall des Neptuniums zum überwiegenden Teil nicht diesem Niveau zugeordnet werden kann. Alle anderen Gammaübergänge, die vom Zerfall des ${}^{232}_{91}\text{Pa}$ für dieses Niveau bekannt sind, wurden nicht beobachtet, da ihre Intensitäten unter der Nachweisgrenze lagen. Von den zum Niveau 1051,7 keV gehörenden Linien konnte lediglich die intensivste mit 895,1 keV beobachtet werden. Alle anderen lagen ebenfalls unter der Nachweisgrenze.

In Tab. 6 sind für die Kerne ${}^{232}_{92}\text{U}$ und ${}^{234}_{92}\text{U}$ die Energien und relativen Intensitäten der Übergänge, jeweils bezogen auf die Summe aller aus einem Niveau stammenden Linien aufgeführt. Die Daten wurden der Literatur entnommen (17), (18). Im $K^\pi=2^-$ -Band des ${}^{234}_{92}\text{U}$ sind Energieniveaus mit 989,8 keV (2-), 1024,2 keV (3-), 1069,6 keV (4-) und Niveaus höheren Spins bekannt. Ein Vergleich der relativen Intensitäten der einzelnen Linien zeigt für das 2^- -Niveau deutliche Ähnlichkeiten mit denen des ${}^{232}_{92}\text{U}$.

Niveau 1098,2 keV

Die Energie von Rotationszuständen deformierter Kerne kann nach Gl. 4 berechnet werden:

$$E_I = E_0 + \frac{\hbar^2}{2J} I(I+1) \quad K \neq \frac{1}{2} \quad \text{Gl. 4}$$

Die Bezugsenergie E_0 und das Trägheitsmoment J sind Konstanten, die von der inneren Kernstruktur abhängen. I ist der Gesamtdrehimpuls des Niveaus mit der Energie E_I . Die Konstanten E_0 und J in Gl. 4 können anhand der bekannten Energien der 2^- - und 3^- -Niveaus des $K^\pi=2^-$ -Bandes ermittelt werden. Unter Verwendung dieser Größen erhält man dann aus Gl. 4 für die Energie des 4^- -Niveaus

Tab. 6: Gammaübergänge vom $K^\pi=2^-$ -Band der Kerne ${}^{232}_{92}\text{U}$ und ${}^{234}_{92}\text{U}$

Übergang	${}^{232}_{92}\text{U}$ (17)		${}^{234}_{92}\text{U}$ (18)	
	Energie [keV]	rel. Intensität	Energie [keV]	rel. Intensität
$2^- \rightarrow 0^+0^+$	1016,8	0,02		
$2^- \rightarrow 0^+2^+$	970,9*	61,2	946,3	56,6
$2^- \rightarrow 0^-1^-$	453,6	12,1	202,9	9,4
$2^- \rightarrow 0^-3^-$	387,9	9,5	140,0	18,9
$2^- \rightarrow 2^+2^+$	150,1	15,1	63,4	15,1
$2^- \rightarrow 2^+3^+$	105,4	2,1		
$3^- \rightarrow 0^+0^+$	1050,9	0,07		
$3^- \rightarrow 0^+2^+$	1003,3	0,7	980,8	23,0
$3^- \rightarrow 0^+4^+$	895,1*	83,2	881,1	38,5
$3^- \rightarrow 2^-2^-$			34,3	38,5
$3^- \rightarrow 0^-3^-$	421,7	9,8		
$3^- \rightarrow 2^+2^+$	183,9	3,9		
$3^- \rightarrow 2^+3^+$	139,2	2,3		
$4^- \rightarrow 0^+4^+$	941,6*		926,3	26,7
$4^- \rightarrow 2^-3^-$			79,7	33,3
$4^- \rightarrow 2^-2^-$			45,2	40,0

* Diese Linien werden beim Zerfall des ${}^{232}_{93}\text{Np}$ beobachtet

$E_I = 1098,1$ keV. Wenn das 4^- -Niveau beim Zerfall des ${}^{232}_{93}\text{Np}$ angeregt wird, so ist zu erwarten, daß es in Analogie zum 4^- -Niveau des ${}^{234}_{92}\text{U}$ die entsprechenden Gammaübergänge zum 4^+ -Niveau des Grundbandes und innerhalb des eigenen Bandes zum 2^- - und 3^- -Niveau aufweisen müßte. Beim Zerfall des ${}^{232}_{93}\text{Np}$ wurde eine Gamma-
linie mit einer Energie von 941,6 keV gefunden. Diese Linie wurde in Analogie zum Niveauschema des ${}^{234}_{92}\text{U}$ einem Übergang vom $K^\pi=2^-4^-$ -Niveau zum $K^\pi=0^+4^+$ -Niveau zugeordnet. Die Energie dieses bislang unbekanntes Niveaus ergibt sich danach zu 1098,2 keV. Die Übergänge zum 2^- - und 3^- -Niveau innerhalb des $K^\pi=2^-$ -Bandes mit 81,4 keV bzw. 46,5 keV sind, falls sie auftreten, hoch konvertiert.

Niveau 1133,0 keV

Vom Niveau 1133,0 keV gehen 2 Gammalinien mit 1133,1 keV und 1085,4 keV aus, deren Intensitäten sich wie 1:1,13 verhalten. Varnell ermittelte 1:3,7 für dieses Verhältnis. Diese beträchtliche Abweichung rührt möglicherweise davon her, daß die 1133 keV-Linie beim Zerfall des $^{232}_{91}\text{Pa}$ nur eine relative Intensität von 0,18 % besitzt, so daß eine genaue Bestimmung der Peakintensität sicher schwierig war.

In Varnells Arbeit wird 1^- als möglicher Spin angegeben. Ein Vergleich mit den Niveauschemen des $^{234}_{92}\text{U}$ und des $^{230}_{90}\text{Th}$ spricht

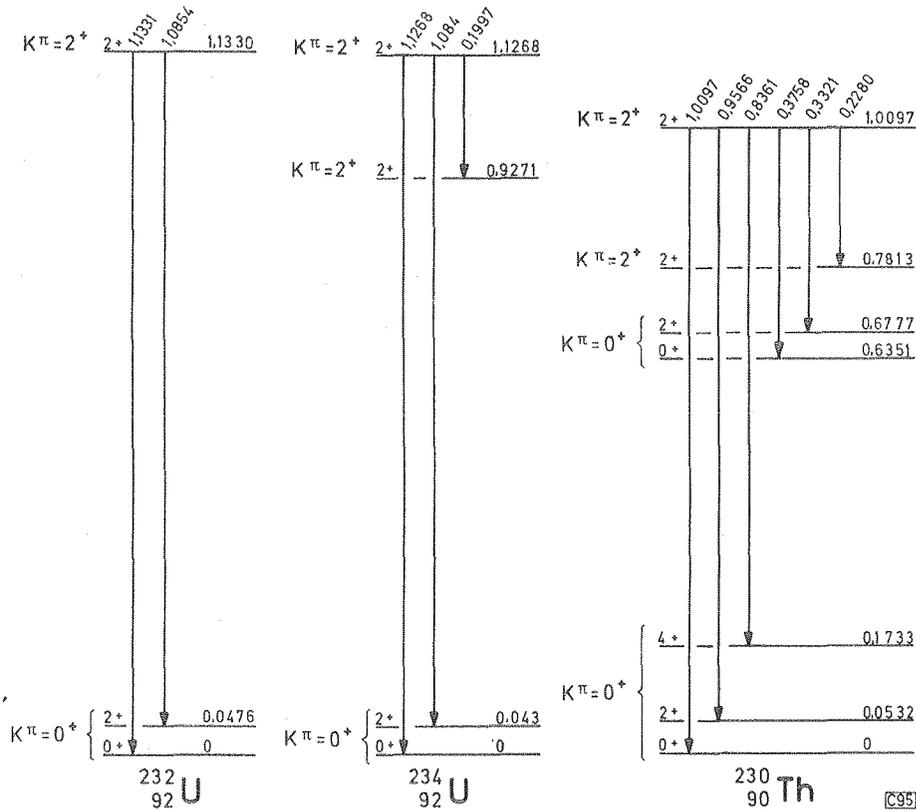


Abb. 10: Gammaübergänge von $K^\pi = 2^+ 2^+$ -Niveaus der Kerne $^{232}_{92}\text{U}$, $^{234}_{92}\text{U}$ und $^{230}_{90}\text{Th}$

eher für ein $K^\pi = 2^+ 2^+$ -Niveau: Im Bild 10 sind neben dem Niveau 1133,0 keV des $^{232}_{92}\text{U}$ die $K^\pi = 2^+ 2^+$ -Niveaus der Kerne $^{234}_{92}\text{U}$ und $^{230}_{90}\text{Th}$ mit ihren Gammaübergängen dargestellt. Vom 1009,7 keV-Niveau des

$^{230}_{90}\text{Th}$ gehen hauptsächlich 2 Gammalinien der Energie 1009,7 keV und 956,6 keV aus, die zum 0^+ - und zum 2^+ -Niveau des Grundbandes führen. Die Intensitäten dieser beiden Linien verhalten sich wie 1:1,36. Alle anderen zu diesem Niveau gehörenden Linien liegen beim Zerfall des $^{232}_{93}\text{Np}$, wenn man annimmt, daß die beiden Niveaus identisch sind, unter der Nachweisgrenze. Das $K^\pi=2^+2^+$ -Niveau des $^{234}_{92}\text{U}$ bei 1126,8 keV weist ebenfalls zwei Gammaübergänge zum 0^+ - bzw. 2^+ -Zustand des Grundbandes auf, deren Intensitäten sich wie 1:1 verhalten. Ein dritter Übergang zum 2^+ -Niveau des Gamma-Vibrationsbandes, der übertragen in das Niveauschema des $^{232}_{92}\text{U}$ eine Energie von 266 keV haben und 3,5 mal so intensiv wie die 1085,4 keV-Linie sein sollte, wird beim Zerfall des $^{232}_{93}\text{Np}$ allerdings nicht beobachtet.

Für das 1133,0 keV-Niveau wurden die theoretischen relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für verschiedene Werte von K_i und I_i berechnet und mit den experimentellen Ergebnissen verglichen, wie in Tab. 7 zu sehen ist. Die gute Übereinstimmung

Tab. 7: Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge vom 1133,0 keV-Niveau zum Grundzustandsband

$K_i=0^-$
 $I_i=1^-$ E1 Übergänge

Übergang	Energie [keV]	rel. reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit		
		Theorie	diese Arbeit	Varnell (17)
$1^- \rightarrow 0^+0^+$	1133,1	1	1	1
$1^- \rightarrow 0^+2^+$	1085,4	2,0	$1,28 \pm 0,2$	3,69

$K_i=1^-$
 $I_i=1^-$ E1-Übergänge

$1^- \rightarrow 0^+0^+$	1133,1	1	1	1
$1^- \rightarrow 0^+2^+$	1085,4	0,5	$1,28 \pm 0,2$	3,69

$K_i=2^+$
 $I_i=2^+$ E2-Übergänge

$2^+ \rightarrow 0^+0^+$	1133,1	1	1	1
$2^+ \rightarrow 0^+2^+$	1085,4	1,43	$1,40 \pm 0,21$	4,02

der aus experimentellen Daten bestimmten relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeit mit dem theoretischen Wert für den Fall $K_i=2^+$ $I_i=2^+$ spricht ebenfalls für die 2^+2^+ -Zuordnung.

$K^\pi=1^-$ -Band

Nach Varnell werden beim β^- -Zerfall des ${}_{91}^{232}\text{Pa}$ zwei Niveaus bei 1172,6 keV (2^-) und 1212,0 keV (3^-) populiert, die zu einem $K^\pi=1^-$ -Band gehören. Beim Zerfall des ${}_{93}^{232}\text{Np}$ wird von diesen beiden nur das 2^- -Niveau populiert, von dem ein Gammaübergang zum 2^+ -Niveau des Grundbandes führt (siehe Bild 7). In einer Arbeit von Chwaszczewska u.a. (22) wird angegeben, daß das 1^- -Niveau dieses Bandes bei 1146,3 keV liegen sollte. Beim Zerfall des ${}_{93}^{232}\text{Np}$ wird eine Gammalinie von 1146,3 keV beobachtet, die möglicherweise von einem Übergang von diesem Niveau zum Grundzustand herrührt. Es ist ebenso möglich, diese Linie als Übergang von einem zu besprechenden 1193,9 keV-Niveau zum 2^+ -Niveau des Grundbandes zu betrachten. Deshalb wurden beide Übergänge in das Zerfallsschema des ${}_{93}^{232}\text{Np}$ (Bild 7) gestrichelt eingezeichnet.

Niveau 1193,9 keV

In der Arbeit von Hollstein u.a. wird ein Energieniveau bei 1195 keV vorgeschlagen, zu dem 5 Gammalinien gehören. Auf Grund des Verzweigungsverhältnisses der Gammaübergänge schlossen die Autoren auf ein 2^+ -Niveau. Die Existenz dieses Niveaus wird nach den Ergebnissen der vorliegenden Arbeit durch 2 weitere Übergänge mit 1146,3 keV und 1193,9 keV erhärtet. Es sei allerdings nochmals darauf hingewiesen, daß die 1146,3 keV-Linie zweimal in das Zerfallsschema des ${}_{93}^{232}\text{Np}$ eingeordnet werden kann. Die Energie des Niveaus wird aus den Gammalinien durch Mittelwertsbildung zu 1193,9 keV berechnet. Der Vergleich mit dem Kern ${}_{90}^{228}\text{Th}$ spricht für den Spin 3^+ oder 4^+ .

Im Zerfallsschema des ${}_{90}^{228}\text{Th}$ ist ein $(3,4^+)$ -Niveau bei 1433 keV bekannt, das Ähnlichkeiten mit dem 1193,9 keV-Niveau des ${}_{92}^{232}\text{U}$ aufweist. Im Bild 11 ist das Niveau 1193,9 keV mit seinen Gammaübergängen neben dem $(3,4^+)$ -Niveau des ${}_{90}^{228}\text{Th}$ dargestellt. In beiden Fällen finden Gammaübergänge zum Gamma-Vibrationsband statt. Übergänge zum $K^\pi=2^-$ -Band oder zum Grundzustands-Rotationsband werden beim ${}_{90}^{228}\text{Th}$ nicht beobachtet.

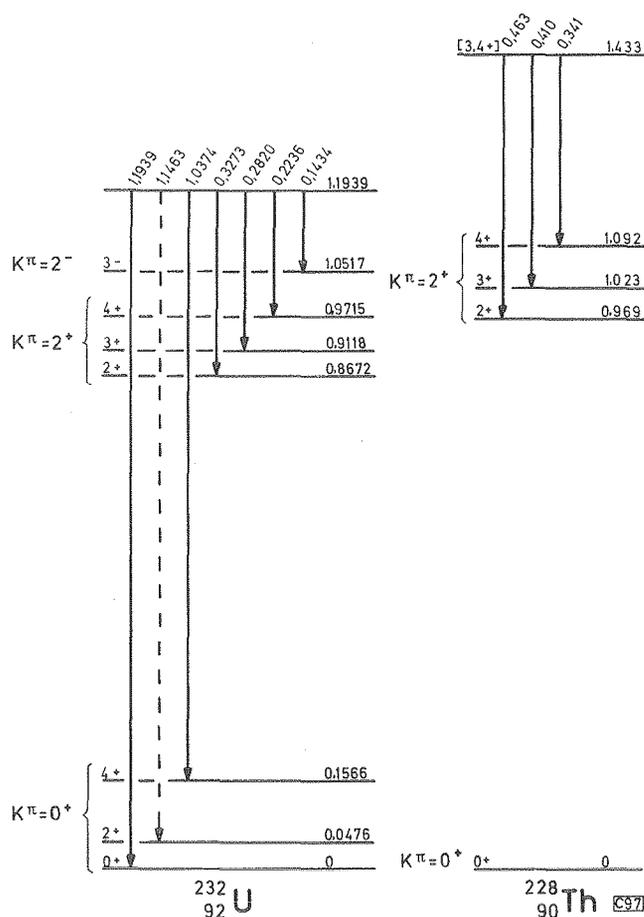


Abb.11: Gammaübergänge vom 1193,9 keV-Niveau des $^{232}_{92}\text{U}$ und vom 1433 keV-Niveau des $^{228}_{90}\text{Th}$

In der Tab. 8 sind die Energien der Gammaübergänge mit ihren relativen Intensitäten für beide Kerne aufgeführt. Dabei ist jeweils die Summe der Intensitäten aller zu einem Niveau gehörenden Gammalinien gleich 100 gesetzt. Die Ähnlichkeit dieser relativen Intensitäten läßt vermuten, daß beiden Niveaus derselbe Spin und dieselbe K-Quantenzahl zuzuordnen ist. Für jeden der Werte 0^+ , 2^+ , 3^+ , 4^+ der K-Quantenzahl sowie für verschiedene Spins des 1193,9 keV Niveaus wurden Berechnungen der relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge zum Gamma-Vibrationsband sowie zum Grundzustandsband an gestellt und die Ergebnisse mit den experimentellen Werten verglichen. Ebenso wurden Berechnungen für $K=0^-, 1^-, 2^-$ für verschiedene Spins durchgeführt. In keinem Fall konnte Überein-

stimmung mit den experimentellen Werten festgestellt werden. Stellt man dieselben Vergleiche für das $(3,4^+)$ -Niveau des $^{228}_{90}\text{Th}$ an, so ist ebenfalls keine Übereinstimmung zwischen den theoretischen und den aus experimentellen Daten bestimmten relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten festzustellen.

Tab. 8: Vergleich des 1193,9 keV-Niveaus des $^{232}_{92}\text{U}$ mit dem 1433 keV-Niveau des $^{228}_{90}\text{Th}$

$^{232}_{92}\text{U}$			$^{228}_{90}\text{Th}(19)$		
Übergang	Energie [keV]	rel.Intens.	Übergang	Energie [keV]	rel.Intens.
1193,9 keV $\rightarrow 2^+ 2^+$	327,3	66,4	1433 $\rightarrow 2^+ 2^+$	463	63,3
$\rightarrow 2^+ 3^+$	282,0	25,1	$\rightarrow 2^+ 3^+$	410	30,6
$\rightarrow 2^+ 4^+$	223,6	2,9	$\rightarrow 2^+ 4^+$	341	6,1
$\rightarrow 0^+ 0^+$	1193,9	0,48			
$\rightarrow 0^+ 2^+$	1146,3	0,46			
$\rightarrow 0^+ 4^+$	1037,4	4,2			
$\rightarrow 2^- 3^-$	143,4	0,51			

Varnell wie Chwaszczewska beobachteten beim β^- -Zerfall des $^{232}_{91}\text{Pa}$ eine 1193 keV Gammalinie, die sicher nicht einem Gammaübergang vom Niveau 1193,9 keV zum Grundzustand zuzuordnen ist, da die wesentlich intensivere 327 keV-Linie von beiden Autoren nicht gefunden wurde. Es ist daher möglich, daß die 1193,9 keV-Linie, die beim Zerfall des $^{232}_{93}\text{Np}$ gemessen wird, zumindestens teilweise noch von einem anderen Gammaübergang herrührt.

3.1.3. Prozentuale Häufigkeit der Übergänge durch Elektroneneinfang zu den einzelnen Niveaus

Die Intensitäten der Gammalinien wurden entsprechend des Multipolcharakters des Übergangs für Konversion korrigiert. Aus der Differenz des Zuflusses von höheren Niveaus und dem Abfluß nach niedrigeren Energieniveaus kann auf die EC-Populierung eines betrachteten Niveaus geschlossen werden. In der Tab. 9 stehen in Spalte 1 die Energien der beim Zerfall des $^{232}_{93}\text{Np}$ durch Elektroneneinfang berührten Niveaus. In der zweiten Spalte sind die

Tabelle 9: Relative Häufigkeit der Übergänge durch Elektroneneinfang zu den einzelnen Niveaus

Oberes Niveau [keV]	Rel. Häufigkeit der EC-Populierung [%]	γ-Energie [keV]	γ-Verzweigung				Unteres Niveau [keV]
			diese Arbeit	Hollstein (4)	Bjørnholm** (16)	Varnell** (17)	
1193,9	87,2	1193,9	0,48				0
		1146,3*	0,46				47,6
		1037,4	4,2	4,6			156,6
		327,3	66,4	71			867,2
		282,0	25,1	23			911,8
		223,6	2,9	1,3			971,5
		143,4	0,51	0,5			1051,7
1172,6	1,4	1126,0				47,6	
1146,3	?	1146,3*				0	
1133,0	1,9	1133,1	47,0			23,5	0
		1085,4	53,0			76,5	47,6
1098,2	1,6	941,6				156,6	
1051,7	0,35	895,1		>80	81	83,2	156,6
1016,8	0,31	970,9					47,6
971,5	2,2	924,4	18,4	>80		31,0	47,6
		814,8	81,6			69,0	156,6
911,8	2,0	864,3	82,8	83	80	77,6	47,6
		755,0	17,2	17	19	21,4	156,6
867,2	0,86	867,2	42,1	46	43	42,7	0
		819,5	56,9	53	55	55,6	47,6
		710,7	1,0	0,6	1,6	1,7	156,6
321,6	} <1 %	165,0					156,6
156,6		109,0					47,6
47,6		47,6					0
0							

* diese Linie kann zweimal eingeordnet werden

** Untersuchung des β⁻-Zerfalls des $^{232}_{91}\text{Pa}$

prozentualen Häufigkeiten der Übergänge durch Elektroneneinfang zu diesen Niveaus aufgeführt. Zur Bestimmung der relativen Häufigkeit der Populierung der Niveaus des Grundzustandsbandes mußte zunächst aus der Intensität des 15 Minutenanteils der $K_{\alpha+\beta}$ -Röntgenstrahlung die Gesamtzahl der Zerfälle ermittelt werden. Aus der Differenz dieses Wertes und der Anzahl der EC-Ereignisse, die die übrigen Niveaus populieren, kann die Häufigkeit der Populierung des Grundzustandsbandes abgeschätzt werden. Es ergab sich, daß höchstens 1 % aller Zerfälle zu diesem Band führen. Die dritte Spalte der Tab. 9 enthält die Energien der Gammaübergänge, die von einem bestimmten Niveau stammen. In der 4. Spalte sind die relativen Gammaintensitäten der zu einem Niveau gehörenden Linien angeführt, wobei jeweils die Summe dieser Linien gleich 100 gesetzt wurde. Die entsprechenden Werte der Arbeiten von Hollstein u.a., Bjørnholm und Varnell sind in den Spalten 5 bis 7 enthalten. Die letzte Spalte schließlich gibt die Energie der Niveaus an, zu denen der in Spalte 3 aufgeführte Gammaübergang geführt hat.

Magnusson u.a. (1) berichten in ihrer Arbeit, sie hätten beim Zerfall des ${}_{93}^{232}\text{Np}$ keine α -Strahlung beobachten können. In einer Tabelle von Keller (23) wird ein oberer Wert von 0,4 % für die Häufigkeit des α -Zerfalls angegeben. In einem Diagramm von Wapstra u.a. (24) wird ein theoretischer Wert von 3 % für β^+ -Zerfall angegeben. Aus der Nachweisgrenze für den 511 keV Vernichtungspeak wurde ein oberer Wert von nur 0,1 % für die Häufigkeit des Zerfalls durch Positronenaussendung abgeschätzt. Das Isotop ${}_{93}^{232}\text{Np}$ zerfällt somit nahezu ausschließlich durch Elektroneneinfang.

3.1.4. Mittlere Anregungsenergie des $^{232}_{92}\text{U}$ und partielle Halbwertszeit für Elektroneneinfang

Anhand des Zerfallsschemas des $^{232}_{93}\text{Np}$ wurde die mittlere Anregungsenergie $\langle E_A(\epsilon) \rangle$ des Tochterkerns $^{232}_{92}\text{U}$ für Elektroneneinfang berechnet.

Nach Keller (23) gilt:

$$\langle E_A(\epsilon) \rangle = \frac{\sum_j P_{\epsilon j} \cdot E_j}{\sum_j P_{\epsilon j}} \quad \text{Gl. 5}$$

E_j : Energie eines Tochterneiveaus j , zu dem ein ϵ -Übergang führt.
 $P_{\epsilon j}$: Prozentuale Häufigkeit eines ϵ -Übergangs zum Niveau j

Damit errechnet sich $\langle E_A(\epsilon) \rangle = 1,150 \text{ MeV}$. Von Keller wurde ein Wert von $1,48 \text{ MeV}$ vorausgesagt.

Für die partielle Halbwertszeit des K-Einfangs t_K gilt nach Keller:

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

q_K : Neutrinoenergie beim K-Einfang
 Q_ϵ : Q-Wert für Elektroneneinfang
 B_K : Bindungsenergie der K-Elektronen
 $C_1 = 184 \pm 78$
 $C_2 = -4,5 \pm 0,7$ } für u-u-Kerne

Unter Berücksichtigung des Elektroneneinfangs der L-Schale gilt nach Keller für die partielle Halbwertszeit t_ϵ :

$$t_\epsilon = \frac{t_K}{1 + \left(\frac{L_{LII}}{L_{LI}}\right) \cdot \left(\frac{q_{LI}}{q_K}\right)^{-C_2} \cdot \left(1 + \frac{L_{LII}}{L_{LI}}\right)} \quad \text{Gl. 7}$$

q_{LI} : Neutrinoenergie beim LI-Einfang
 $\frac{L_{LII}}{L_{LI}}$ bzw. $\frac{L_{LIII}}{L_{LI}}$: Z-abhängige Konstanten nach (24)

Unter Berücksichtigung des nach Gl. 5 aus experimentellen Daten berechneten Wertes der mittleren Anregungsenergie ergibt sich

für $t_K = 69,6$ min und für $t_\epsilon = 61,2$ min. Unter Verwendung der nach der Systematik erwarteten mittleren Anregungsenergie von 1,48 MeV hatte Keller mit $t_\epsilon = 3,3$ h einen wesentlich höheren Wert berechnet. Auch der aus dem richtigen Wert der mittleren Anregungsenergie berechnete Wert $t_\epsilon = 61,2$ min ist noch erheblich größer als die experimentell bestimmte Halbwertszeit des $^{232}_{93}\text{Np}$. Man muß daher annehmen, daß der Elektroneneinfang dieses Isotops weniger gehemmt ist, als bei anderen u-u-Kernen.

3.1.5. Bandenköpfe des Oktupol-Vibrationsbandes, des Beta-Vibrationsbandes und des Gamma-Vibrationsbandes für $^{232}_{92}\text{U}$, $^{234}_{92}\text{U}$, $^{236}_{92}\text{U}$, $^{238}_{92}\text{U}$

Im Bild 12 sind für die Uranisotope mit den Massenzahlen $A=232$, 234 , 236 , 238 die Bandenköpfe des Oktupol-, des Beta- und des Gamma-Vibrationsbandes aufgezeichnet. Für den Kern $^{236}_{92}\text{U}$ liegen

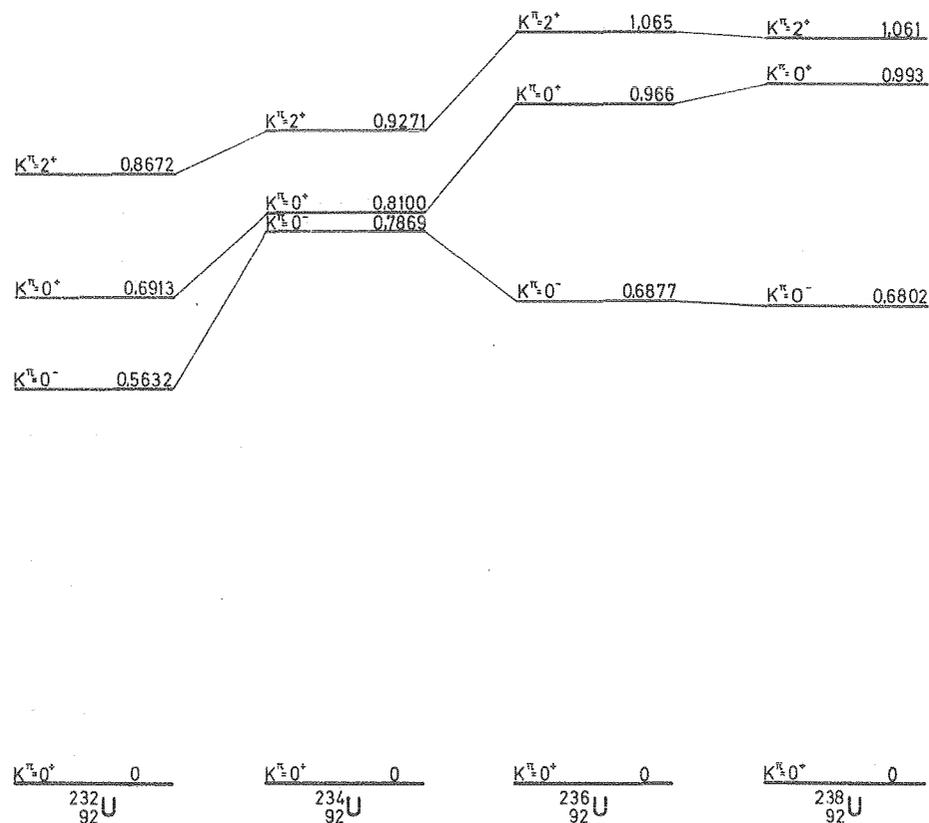


Abb. 12: Energielage des Oktupol-Vibrationsbandes $K^\pi=0^-$, des Beta-Vibrationsbandes $K^\pi=0^+$ und des Gamma-Vibrationsbandes $K^\pi=2^+$ für $^{232}_{92}\text{U}$, $^{234}_{92}\text{U}$, $^{236}_{92}\text{U}$ und $^{238}_{92}\text{U}$

bislang nur wenige Angaben (25) über ein Niveauschema vor. Trautmann u.a. (26) untersuchten den β^- -Zerfall des $^{236}_{91}\text{Pa}$. Anhand der von ihnen gemessenen Gammalinien wurde versucht, aufbauend auf dem teilweise bekannten Niveauschema des $^{236}_{92}\text{U}$ mit Hilfe des Rechenprogramms RITZ (27), das nach dem Ritz'schen Kombinationsprinzip arbeitet, ein verbessertes Niveauschema zu erstellen. Dieses Schema ist in Bild 13 dargestellt. Wenn man für

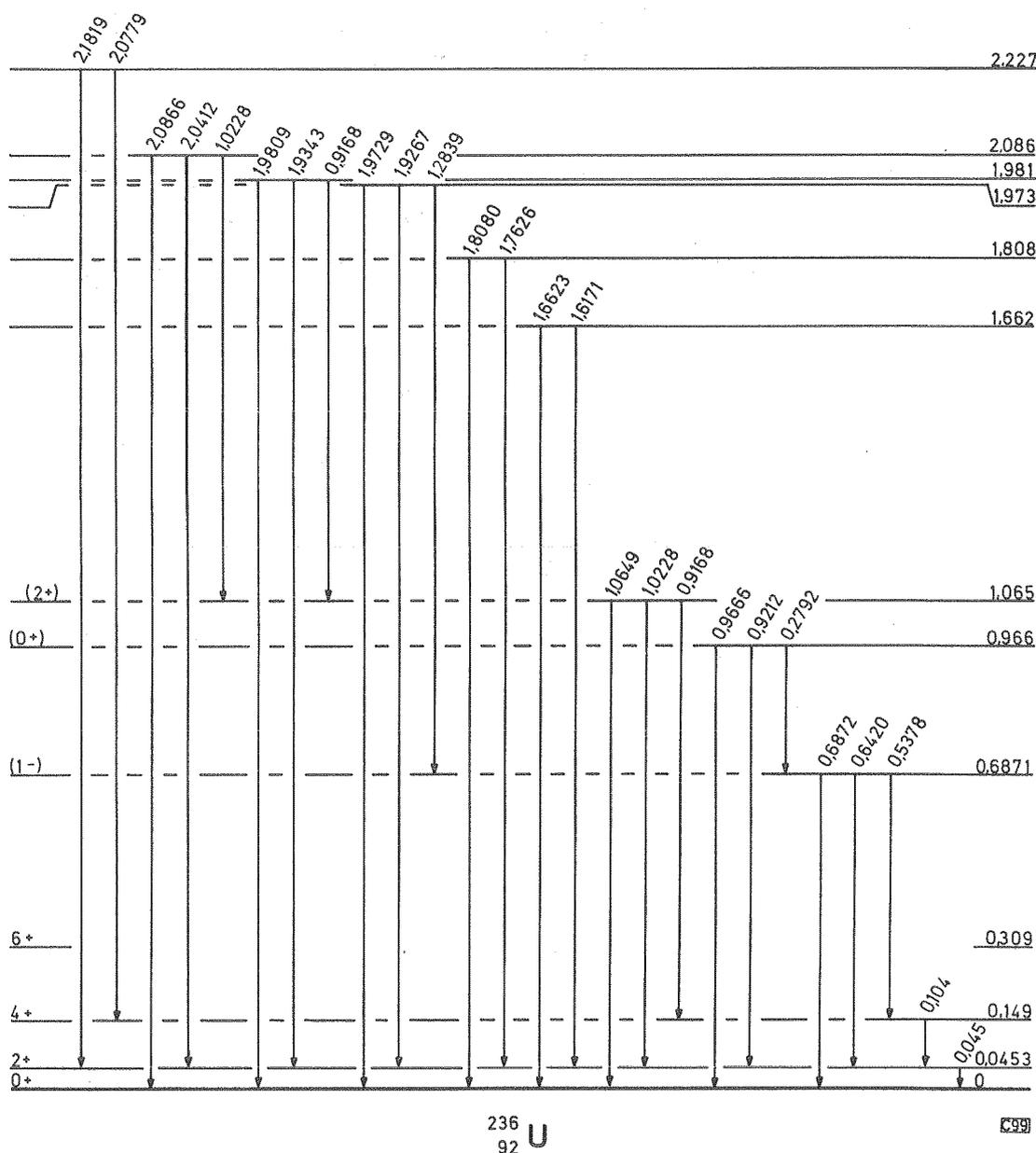


Abb. 13: Niveauschema des $^{236}_{92}\text{U}$

die Niveaus 687,1 keV, 966 keV und 1065 keV annimmt, daß sie die Bandenköpfe des Oktupol-Vibrationsbandes $K^\pi=0^-$, des Beta-Vibrationsbandes $K^\pi=0^+$ und des Gamma-Vibrationsbandes $K^\pi=2^+$ darstellen, passen alle drei gut in die in Bild 12 gezeigte Systematik. Eine Auswertung über die relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten war im Falle des $^{236}_{92}\text{U}$ nicht möglich, da von Trautmann u.a. nur zu wenigen Gammalinien Intensitätsangaben gemacht wurden.

3.2. Neptunium-233

Die Ergebnisse für das Isotop $^{233}_{93}\text{Np}$ resultieren aus Versuchen, bei denen das Urantarget mit Deuteronen von 11 MeV bestrahlt wurde. Entsprechend der Lage des Maximums der Anregungsfunktion für die (d,2n)-Reaktion (siehe Bild 2) wäre eine Deuteronenenergie von 13 MeV zu wählen, doch zeigte es sich, daß in diesem Fall schon ein beträchtlicher Anteil $^{232}_{93}\text{Np}$ gebildet wurde, was die Analyse des $^{233}_{93}\text{Np}$ erschwerte.

Die Analyse der Röntgenlinien des Urans ergab $36,2^{+0,1}$ min für die Halbwertszeit des $^{233}_{93}\text{Np}$ in guter Übereinstimmung mit dem von Magnusson u.a. (1) ermittelten Wert.

In den gemessenen Gamma-Spektren wurden 21 Peaks beobachtet, die dem Isotop $^{233}_{93}\text{Np}$ zuzuordnen sind. In der Tabelle 10 sind in der ersten Spalte die Energien dieser Peaks aufgeführt. In der Arbeit von Lessler (3) wurden Gammapeaks bei 95, 150, 170, 205 und 410 keV sowie Gammastrahlung im Bereich von 230-310 keV und 500-560 keV angegeben. Bei den Untersuchungen der vorliegenden Arbeit konnten die Peaks bei 95, 150, 170 und 410 keV trotz intensiver Suche nicht gefunden werden. Die Nachweisgrenze für alle Gammalinien lag bei 0,5 % der Intensität des stärksten Peaks (312,1 keV). Zum Vergleich mit den in der ersten Spalte aufgeführten Energien sind in der zweiten Spalte die Energien der entsprechenden Gammapeaks angegeben, die Albridge u.a. (28) aus Untersuchungen des β^- -Zerfalls des $^{233}_{91}\text{Pa}$ ermittelten. In der dritten Spalte stehen die relativen Intensitäten der Gammapeaks, wobei die Intensität des intensivsten Peaks bei 312,1 keV gleich 100 gesetzt wurde.

Tabelle 10: Energien und relative Intensitäten der $^{233}_{93}\text{Np}$ -
Gammapeaks

γ -Energie [keV]		Relative γ -Intensität*
diese Arbeit	Albridge (28)**	
	40,35	
205,3 \pm 0,4		3,3 \pm 0,3
226,0 \pm 0,5		5,1 \pm 0,4
234,3 \pm 0,3		22 \pm 1
242,5 \pm 0,4		12 \pm 1
247,6 \pm 0,4		5,7 \pm 0,7
256,0 \pm 0,5		6,0 \pm 0,4
258,5 \pm 0,5		14 \pm 1
	271,62	
280,5 \pm 0,5		19 \pm 1
299,1 \pm 0,3	300,2	84 \pm 4
312,1 \pm 0,3	311,91	100
321,0 \pm 0,3		9,9 \pm 0,7
340,7 \pm 0,4	340,51	7,9 \pm 0,4
393,0 \pm 0,4		2,5 \pm 0,2
425,6 \pm 0,4		8,3 \pm 0,5
504,8 \pm 0,5		5,9 \pm 0,9
506,5 \pm 0,5		22 \pm 3
546,9 \pm 0,4		40 \pm 2
557,1 \pm 0,4		4,0 \pm 0,4
597,7 \pm 0,4		3,8 \pm 0,3
644,4 \pm 0,5		1,1 \pm 0,1
665,9 \pm 0,4		2,4 \pm 0,2

* bezogen auf die Intensität des 312,1 keV-Peaks

** Ergebnisse aus Untersuchungen des β^- -Zerfalls des $^{233}_{91}\text{Pa}$

3.2.1. Das Zerfallsschema des ${}^{233}_{93}\text{Np}$

Mit den beim Zerfall des Neptuniums beobachteten Gammalinien wurde das vom β^- -Zerfall des ${}^{233}_{91}\text{Pa}$ her bekannte Niveauschema des ${}^{233}_{92}\text{U}$ (28) erweitert. Dies Schema ist im Bild 14 dargestellt. Zusätzlich zu den bekannten Energieniveaus wurden 4 weitere bei 298,4 keV, bei 320,8 keV, bei 546,7 keV und bei 597,1 keV eingeführt. 5 Gammalinien mit den Energien 242,5 keV, 393,0 keV, 425,6 keV, 644,4 keV und 665,9 keV konnten nicht in dieses erweiterte Niveauschema eingeordnet werden.

3.2.2. Diskussion des Niveauschemas des ${}^{233}_{92}\text{U}$

Die Energieniveaus des Grundzustandsbandes $5/2^+$ [633], des $3/2^+$ [631]-Bandes und des $1/2^+$ [631]-Bandes sind aus Untersuchungen des Zerfalls des ${}^{233}_{91}\text{Pa}$ bekannt (28). Beim Zerfall des ${}^{233}_{93}\text{Np}$ wird von diesen nur das Grundzustandsband sowie das $3/2^+$ [631]-Band populiert. Gammalinien, die von Niveaus des $1/2^+$ [631]-Bandes herrühren, wurden nicht beobachtet.

$3/2^+$ [631]-Band

Die intensivste Gammalinie, die beim Zerfall des ${}^{233}_{93}\text{Np}$ beobachtet wird, rührt von einem Übergang vom $3/2^+$ -Niveau dieses Bandes zum Grundzustand her. Anhand der Energie dieser Linie wurde die Energie des $3/2^+$ -Niveaus zu 312,1 keV neu berechnet. Eine zweite Gammalinie mit 271,62 keV, die von diesem Niveau nach Angaben von Albridge u.a. ausgeht, konnte aus Intensitätsgründen nicht beobachtet werden. Zum $5/2^+$ -Niveau dieses Bandes gehören nach Albridge u.a. 2 Gammalinien mit 300,2 keV und 340,5 keV. Nach Zender (29) verhalten sich die Gammaintensitäten dieser Linien wie 1,7:1. Das Verhältnis der entsprechenden Linien beträgt beim Zerfall des ${}^{233}_{93}\text{Np}$ dagegen 9,4:1. Daraus geht hervor, daß es sich bei dem 299,1 keV Peak um einen Doppelpeak handelt, und daß der überwiegende Anteil der Intensität dieses Peaks nicht von einem Übergang vom $5/2^+$ -Niveau des $3/2^+$ [631]-Bandes zum ersten angeregten Zustand des Grundzustandsbandes herrührt. Das von Zender angegebene Intensitätsverhältnis wurde dazu ver-

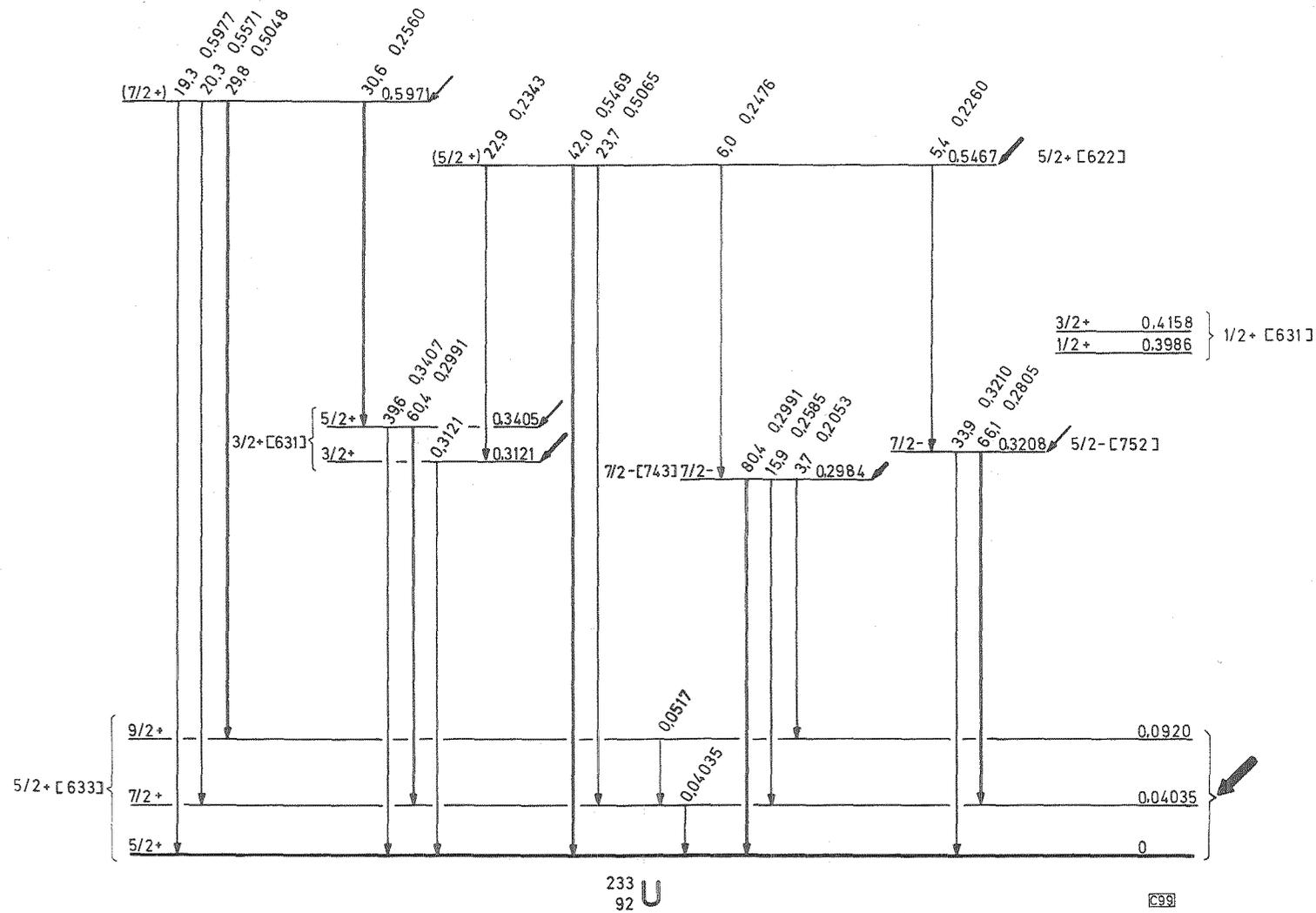


Abb. 14: Zerfallsschema des $^{233}_{93}\text{Np}$

wandt, den Anteil der Intensität des 299,1 keV Peaks zu berechnen, der dem Übergang vom $5/2^+$ -Niveau zuzuordnen ist. Für dieses 340,5 keV-Niveau wurden die theoretischen, relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge zum Grundzustand berechnet und mit den experimentellen Werten von Zender verglichen. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 11 aufgeführt.

Tabelle 11: Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeiten für M1-Übergänge vom $5/2^+$ -Niveau des $3/2^+[631]$ -Bandes zum Grundzustandsband

Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit

Energie [keV]	Theorie	Zender (29)
340,7	0,4	0,38
299,1	1	1

Die Ähnlichkeit der in der Tabelle 11 aufgeführten Werte bestätigt die $3/2^+[631]$ -Zuordnung.

Niveau 298,4 keV

Thomas u.a. (30) untersuchten den α -Zerfall des $^{237}_{94}\text{Pu}$, der ebenfalls zu dem Tochterkern $^{233}_{92}\text{U}$ führt. Aus der Energiedifferenz der beiden beobachteten α -Linien bei 5,36 MeV und 5,65 MeV schlossen sie auf ein Energieniveau des $^{233}_{92}\text{U}$ bei ca. 300 keV. Es liegt nahe, den überwiegenden Anteil des beim Zerfall des $^{233}_{93}\text{Np}$ beobachteten 299,1 keV Doppelpeaks einem Übergang von diesem Niveau zum Grundzustand zuzuordnen. Die relative Gammaintensität dieses Übergangs errechnet sich zu 72 % der Intensität des 312,1 keV Peaks. Zwei weitere Gammalinien mit den Energien 258,5 keV bzw. 205,3 keV fügen sich gut in das Niveauschema als Übergänge von diesem Niveau zum $7/2^+$ - bzw. $9/2^+$ -Niveau des Grundzustandsbandes ein. Die Energie dieses Niveaus errechnet sich aus den Energien der Gammalinien als Mittelwert zu 298,4 keV.

Der Grundzustand des $^{237}_{94}\text{Pu}$ ist ein $7/2-[743]$ -Zustand. Da beim α -Zerfall des $^{237}_{94}\text{Pu}$ zu 80 % das 298,4 keV-Niveau populiert wird, schlossen Mottelson u.a. (31) auf ein $7/2-[743]$ -Niveau. Albridge u.a. (28) dagegen schlossen aufgrund zweier von ihnen beim Zerfall des $^{233}_{91}\text{Pa}$ gemessenen Gammalinien, die sie aber nicht sicher diesem 298,4 keV-Niveau zuordnen konnten, auf ein $5/2-[752]$ -Niveau. Für beide möglichen Zuordnungen wurden die theoretischen, relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten berechnet und mit dem Experiment verglichen, wie Tab. 12 zeigt. Dabei wurde angenommen, daß es sich um reine E1-Übergänge handelt. Entsprechend wurden auch die Gammaintensitäten für Konversion korrigiert.

Tabelle 12: Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeiten für E1-Übergänge vom Niveau 298,4 keV zum Grundzustandsband

Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit

Energie [keV]	Theorie		diese Arbeit
	7/2-[743]	5/2-[752]	
299,1	3,38	2,5	$3,21 \pm 0,25$
258,5	1	1	1
205,3	0,125	-	$0,12 \pm 0,02$

Die gute Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment spricht für die $7/2-[743]$ -Zuordnung.

Niveau 546,7 keV

4 Gammalinien passen gut in das Niveauschema des $^{233}_{92}\text{U}$, wenn man ein neues Energieniveau bei 546,7 keV annimmt. Unter Berücksichtigung des neuen Niveaus bei 320,8 keV fügt sich noch eine weitere Linie in das Schema ein. Um Aussagen über Spin und Parität dieses Niveaus machen zu können, wurde versucht, anhand eines Nilssondiagrammes (32) für einen Deformationsfaktor $\delta = 0,2-0,25$ die möglichen Nilssonzustände zu ermitteln. Danach

könnte es sich bei dem Niveau 546,7 keV um eines des $5/2^+ [622]$ - oder des $7/2^+ [624]$ -Bandes handeln.

Für folgende Fälle wurden Berechnungen der relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten durchgeführt: $K=5/2, I=5/2$; $K=5/2, I=7/2$; $K=7/2, I=7/2$. Da von vornherein nicht entschieden werden kann, ob es sich um reine M1- oder E2-Übergänge handelt, wurden für beide Fälle die Rechnungen durchgeführt. Die Ergebnisse sind aus Tabelle 13 zu entnehmen.

Tabelle 13: Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge vom 546,7 keV-Niveau zum Grundzustandsband.

M1-Übergänge

Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit

Energie [keV]	Theorie			diese Arbeit
	$K=5/2, I=5/2$	$K=5/2, I=7/2$	$K=7/2, I=7/2$	
546,9	2,5	0,54	3,38	$1,37^{+0,22}$
506,5	1	1	1	1

E2-Übergänge

Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit

Energie [keV]	Theorie			diese Arbeit
	$K=5/2, I=5/2$	$K=5/2, I=7/2$	$K=7/2, I=7/2$	
546,9	0,75	37,5	1,46	$1,2^{+0,2}$
506,5	1	1	1	1

Vergleicht man die theoretischen, relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten mit den aus experimentellen Daten gewonnenen, so muß angenommen werden, daß es sich bei den Übergängen vom 546,7 keV-Niveau nicht um reine M1- oder E2-Übergänge handelt, sondern um eine Mischung von beiden. Eine sichere Aussage über K-Quantenzahl und Spin dieses Niveaus ist anhand dieser Vergleiche nicht möglich. Berücksichtigt man jedoch, daß die Übergänge zu $3/2^-$, $5/2^-$ und $7/2^-$ -Niveaus führen, so würde man dazu tendieren, die $K=5/2, I=5/2$ Zuordnung zu wählen.

Niveau 597,1 keV

4 Gammalinien können gut in das Niveauschema des $^{233}_{92}\text{U}$ eingeordnet werden, wenn ein weiteres Energieniveau bei 597,1 keV angenommen wird. Aus den Intensitäten der von diesem Niveau ausgehenden Gammaübergänge möchte man auf ein Niveau mit dem Spin $7/2$ schließen. Aus dem Nilssondiagramm geht hervor, daß es sich wie bei dem Niveau 546,7 keV um eines des $5/2+[622]$ - oder des $7/2+[624]$ -Bandes handeln könnte. Wiederum wurde versucht, anhand von Berechnungen der relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten Aussagen über den Charakter des 597,1 keV-Niveaus zu machen. Die Tabelle 14 gibt die Ergebnisse der Berechnungen für die Werte der K-Quantenzahl $K=5/2$ und $K=7/2$ sowie für den Spin $I=5/2$ bzw. $I=7/2$ sowohl für M1- wie für E2-Übergänge wieder.

Tabelle 14: Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge vom Niveau 597,1 keV zum Grundzustandsband

M1-Übergänge

Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit

Energie [keV]	Theorie			diese Arbeit
	$K=5/2, I=5/2$	$K=5/2, I=7/2$	$K=7/2, I=7/2$	
597,7	1	1	1	1
557,1	0,4	1,85	0,296	$1,35 \pm 0,17$
504,8	-	1,82	0,0265	$2,76 \pm 0,46$

E2-Übergänge

Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit

Energie [keV]	Theorie			diese Arbeit
	$K=5/2, I=5/2$	$K=5/2, I=7/2$	$K=7/2, I=7/2$	
597,7	1	1	1	1
557,1	1,33	0,0267	0,685	$1,5 \pm 0,2$
504,8	0,467	0,53	0,272	$3,65 \pm 0,61$

Aufgrund des Vergleichs der theoretischen und der experimentellen, relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten kann der Spin des 597,1 keV-Niveaus nicht bestimmt werden. Da die Gammaübergänge zum $5/2^+$ -, zum $7/2^+$ - und zum $9/2^+$ -Niveau des Grundzustandsbandes näherungsweise gleich intensiv sind, wurde angenommen, daß es sich um ein $7/2^+$ -Niveau handelt.

Niveau 320,8 keV

Aufbauend auf den bislang besprochenen Energieniveaus wurde versucht, mit Hilfe des Rechenprogramms RITZ weitere Energieniveaus zu ermitteln und damit weitere Gammalinien einzuordnen. Das Ergebnis dieser Rechnungen war die Einführung eines Niveaus bei 320,8 keV, das mit 3 Gammaübergängen belegt werden kann. Da Übergänge zu $7/2^+$ - und $5/2^+$ -Niveaus stattfinden, ist zu erwarten, daß der Spin $5/2$ oder $7/2$ ist. Aus dem Nilssondiagramm geht hervor, daß es sich möglicherweise um ein Niveau des $5/2$ -[752]-Bandes handeln könnte. Berechnungen der relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten wurden für $K=5/2, I=5/2$; $K=5/2, I=7/2$; und $K=7/2, I=7/2$ durchgeführt. Die Ergebnisse sind in der Tab. 15 aufgeführt.

Tabelle 15: Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge vom Niveau 320,8 keV zum Grundzustandsband

E1-Übergänge

Relative, reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit

Energie [keV]	Theorie			diese Arbeit
	$K=5/2, I=5/2$	$K=5/2, I=7/2$	$K=7/2, I=7/2$	
321,0	2,5	0,54	3,38	$0,34 \pm 0,03$
280,5	1	1	1	1

Ein Vergleich der theoretischen und der experimentellen, relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten zeigt für den Fall $K=5/2, I=7/2$ noch die beste Übereinstimmung. Daher wurde angenommen, daß es sich bei dem 320,8 keV-Niveau um das $7/2^-$ -Niveau des $5/2$ -[752]-Bandes handelt.

3.2.3. Prozentuale Häufigkeit der Übergänge durch Elektroneneinfang zu den einzelnen Niveaus

Für das erstellte Niveauschema wurde anhand der gemessenen Gammalinien die prozentuale Häufigkeit des Übergangs durch Elektroneneinfang zu den einzelnen Niveaus berechnet. Dazu wurden zunächst die Gammaintensitäten der einzelnen Peaks entsprechend ihres Multipolcharakters für Konversion korrigiert. Soweit es möglich war, wurden dabei die von Zender (29) aus dem β^- -Zerfall des ${}_{91}^{233}\text{Pa}$ ermittelten Konversionsfaktoren verwendet. Lagen keine experimentell gewonnenen Konversionsfaktoren vor, so wurden theoretische verwandt (33).

In der Tabelle 16 stehen in der ersten Spalte die Energien der durch EC populierte Niveaus. In der zweiten Spalte sind die prozentualen Häufigkeiten der Populierung dieser Niveaus aufgeführt. Dabei ist festzustellen, daß 97 % aller Zerfälle durch Elektroneneinfang zum Grundzustandsband führen. Diesen Wert erhält man in der gleichen Weise, wie es schon bei der Diskussion des Isotops ${}_{93}^{232}\text{Np}$ erklärt wurde. Eine Aussage darüber wie sich diese 97 % auf die Niveaus des Grundzustandsbandes aufteilen, war nicht möglich, doch ist anzunehmen, daß fast ausschließlich der Grundzustand populiert wird, da der Grundzustand des ${}_{93}^{233}\text{Np}$ wahrscheinlich ein $5/2^+$ -Zustand ist. In der dritten Spalte der Tabelle 16 sind die Energien der Gammaübergänge wiedergegeben. Die relativen Gammaintensitäten der Gammalinien, die von einem Niveau ausgehen, sind in der vierten Spalte aufgeführt. Dabei ist die Summe der Intensitäten der Gammalinien pro Niveau gleich 100 gesetzt.

Der α -Zerfall des ${}_{93}^{233}\text{Np}$ wurde von Magnusson u.a. (1) untersucht. Die Autoren bestimmten die partielle α -Zerfallshalbwertszeit zu ca. 10 Jahren, entsprechend einem $\text{EC}(K)/\alpha$ -Verhältnis von $1,5 \cdot 10^5$. Der Zerfall durch Positronenaussendung ist entsprechend der Nachweisgrenze für den 511 keV-Vernichtungspeak kleiner als 0,5%. Wegen der maximalen β^+ -Energie von 50 keV kann man jedoch annehmen, daß der tatsächliche Wert noch wesentlich kleiner ist.

Tabelle 16: Relative Häufigkeit der Übergänge durch Elektroneneinfang zu den einzelnen Niveaus

Oberes Niveau [keV]	Rel.Häufigkeit der EC-Populierung [%]	γ -Energie [keV]	γ -Verzwei- gung	Unteres Niveau [keV]
597,1	0,19	$\left\{ \begin{array}{l} 597,7 \\ 557,1 \\ 504,8 \\ 256,0 \end{array} \right.$	19,3	0
			20,3	40,35
			29,8	92,0
			30,6	340,5
546,7	0,85	$\left\{ \begin{array}{l} 546,9 \\ 506,5 \\ 247,6 \\ 234,3 \\ 226,0 \end{array} \right.$	42,0	0
			23,7	40,35
			6,0	298,4
			22,9	312,1
			5,4	320,8
340,5	0,15	$\left\{ \begin{array}{l} 340,7 \\ 299,1 \end{array} \right.$	39,6*	0
			60,4*	40,35
320,8	0,19	$\left\{ \begin{array}{l} 321,0 \\ 280,5 \end{array} \right.$	33,9	0
			66,1	40,35
312,1	0,91	312,1		0
298,4	0,66	$\left\{ \begin{array}{l} 299,1 \\ 258,5 \\ 205,3 \end{array} \right.$	80,4	0
			15,9	40,35
			3,7	92,0
92,0	} 96,8			
40,35				
0				

* Nach Zender (29)

3.2.4. Mittlere Anregungsenergie des ${}_{92}^{233}\text{U}$ und partielle Halbwertszeit für Elektroneneinfang

Anhand des Zerfallsschemas des ${}_{93}^{233}\text{Np}$ wurde die mittlere Anregungsenergie des Tochterkerns ${}_{92}^{233}\text{U}$ nach Gl. 5 zu $\langle E_A(\epsilon) \rangle = 0,013 \text{ MeV}$ berechnet. Dieser Wert ist wesentlich niedriger als der von Keller (23) mit 0,28 MeV angegebene. Unter Verwendung des Werts 0,013 MeV für die mittlere Anregungsenergie errechnet sich die partielle Halbwertszeit für den K-Einfang nach Gl. 6 zu $t_K = 15,1 \text{ min.}$ Berücksichtigt man den Elektroneneinfang in der L-Schale, so ergibt sich $t_\epsilon = 11,9 \text{ min.}$ Von Keller (23) wurde aufgrund der von ihm abgeschätzten mittleren Anregungsenergie die partielle Halbwertszeit $t_\epsilon = 35,0 \text{ min}$ vorausgesagt. Der experimentell bestimmte Wert der Halbwertszeit beträgt wie erwähnt 36,2 min. Bei Keller wird für den mittleren Fehler des Einzelwerts t_ϵ ein Faktor 3,2 angegeben. Damit liegt die in der vorliegenden Arbeit ermittelte theoretische Halbwertszeit $t_\epsilon = 11,9 \text{ min}$ noch innerhalb der Fehlergrenze. Da die aus der mittleren Anregungsenergie von 0,013 MeV berechnete Halbwertszeit t_ϵ wesentlich kleiner ist als der experimentell bestimmte Wert, muß angenommen werden, daß der Zerfall des ${}_{93}^{233}\text{Np}$ stärker gehemmt ist, als der Durchschnitt der vergleichbaren Kerne.

3.2.5. Bandenköpfe in den Niveauschemen der Kerne ${}_{92}^{233}\text{U}$, ${}_{92}^{235}\text{U}$, ${}_{92}^{237}\text{U}$ und ${}_{92}^{239}\text{U}$

Im Bild 15 sind die Bandenköpfe der bekannten Bänder des Kerns ${}_{92}^{233}\text{U}$ neben den entsprechenden Bandenköpfen der Kerne ${}_{92}^{235}\text{U}$, ${}_{92}^{237}\text{U}$ und ${}_{92}^{239}\text{U}$ aufgezeichnet. Die Angaben für die drei letztgenannten Isotope wurden der Literatur entnommen (34), (35), (36), (37).

Im Niveauschema des ${}_{92}^{237}\text{U}$ sind vom $7/2^+ [624]$ -Band nur das $9/2^+$ - und das $11/2^+$ -Niveau bekannt. Rechnet man aus den Energien und den Spins dieser Niveaus die Energie des $7/2^+$ -Niveau nach Gl. 4 aus, so müßte dieses Niveau bei 426 keV liegen. Damit passt das $7/2^+ [624]$ -Band des ${}_{92}^{237}\text{U}$ gut in die im Bild 15 gezeigte Systematik. Im Niveauschema des Kerns ${}_{92}^{235}\text{U}$ ist nur das $9/2^+$ -Niveaus des $7/2^+ [624]$ -Bandes bekannt. Legt man dieselbe Energiedifferenz zwischen dem $7/2^+$ - und dem $9/2^+$ -Niveau dieses Bandes zugrunde, die sich für den Kern ${}_{92}^{237}\text{U}$ ergab, so müßte das $7/2^+$ -Niveau bei ca. 452 keV

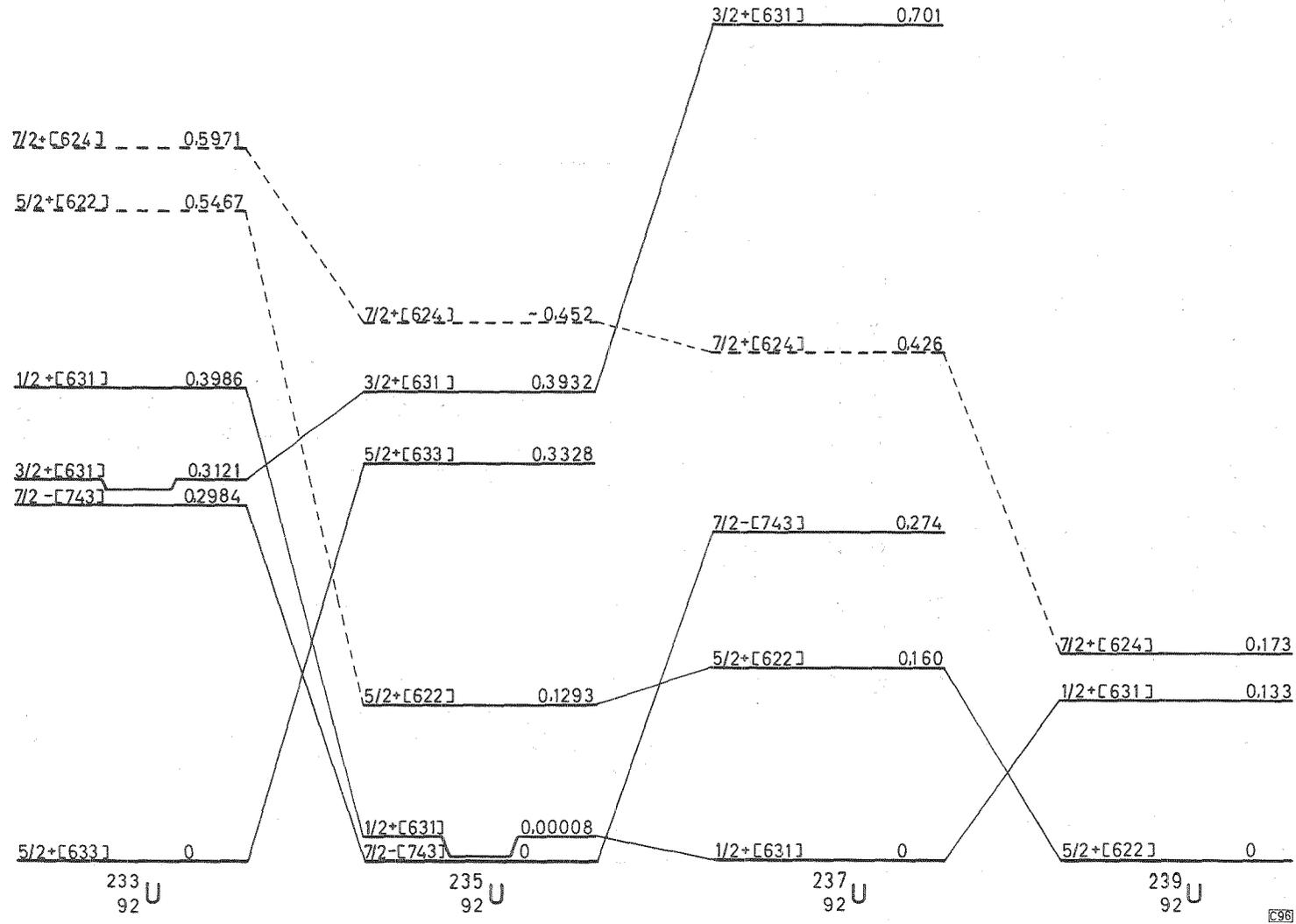


Abb. 15: Energielage der Bänder der Isotope $^{233}_{92}\text{U}$, $^{235}_{92}\text{U}$, $^{237}_{92}\text{U}$ und $^{239}_{92}\text{U}$.
 Extrapolierte Niveaus sind gestrichelt eingezeichnet.

liegen. Das 597,1 keV-Niveau des $^{233}_{92}\text{U}$ würde sich gut in die Systematik im Bild 15 einfügen, wenn man annimmt, daß es sich dabei um den Bandenkopf des $7/2+[624]$ -Bandes handelt.

3.3. Neptunium-231

Zur Untersuchung des Isotops $^{231}_{93}\text{Np}$ wurde das Urantarget mit Deuteronen von 28 MeV Energie beschossen und Neptunium chemisch abgetrennt. Da die Abfallskurve der Röntgenlinien infolge der Neptuniumisotope, die außer dem gewünschten $^{231}_{93}\text{Np}$ erzeugt wurden, sehr komplex war, wurde die Halbwertszeit des $^{231}_{93}\text{Np}$ aus dem Abfall der Intensität der beiden intensivsten Gammalinien bei 370,9 keV und bei 348,4 keV ermittelt. Es ergab sich ein Mittelwert von $48,8 \pm 0,2$ min, welcher in guter Übereinstimmung mit dem Ergebnis von Magnusson u.a. (1) ist.

Insgesamt wurden aus den gemessenen Spektren 15 Peaks ermittelt, die dem Isotop $^{231}_{93}\text{Np}$ zuzuordnen sind. In der Tabelle 17 sind die

Tabelle 17: Energien und relative Intensitäten der $^{231}_{93}\text{Np}$ -Peaks

γ -Energie [keV]	Relative γ -Intensität*
$263,8 \pm 0,3$	29 ± 1
$348,4 \pm 0,3$	37 ± 2
$370,9 \pm 0,3$	100
$376,3 \pm 0,4$	$6,5 \pm 0,3$
$416,3 \pm 0,3$	$2,9 \pm 0,6$
$420,7 \pm 0,4$	$10,7 \pm 1,1$
$436,9 \pm 0,4$	$2,9 \pm 0,6$
$481,6 \pm 0,5$	$6,2 \pm 1,2$
$484,7 \pm 0,5$	$16,6 \pm 3,2$
$715,5 \pm 0,4$	$2,5 \pm 0,3$
$737,8 \pm 0,3$	$12,6 \pm 0,7$
$786,6 \pm 0,3$	$1,9 \pm 0,1$
$837,3 \pm 0,4$	$4,1 \pm 0,6$
$851,6 \pm 0,5$	$7,1 \pm 0,3$
$1108,1 \pm 0,3$	$5,5 \pm 0,5$

* bezogen auf die Intensität des 370,9 keV-Peaks

Energien dieser Gammapeaks mit ihren relativen Intensitäten aufgeführt. Dabei wurde die Intensität des intensivsten Peaks bei 370,9 keV gleich 100 gesetzt.

3.3.1. Das Zerfallsschema des $^{231}_{93}\text{Np}$

Mit den beobachteten Gammalinien wurde versucht, ein Zerfallsschema des $^{231}_{93}\text{Np}$ zu erstellen. Das Grundzustandsband des $^{231}_{92}\text{U}$ ist nach Hyde (38) das $5/2^-$ -[752]-Band. Gammalinien, die von Übergängen vom $7/2^-$ - oder vom $9/2^-$ -Niveau dieses Bandes herühren, konnten nicht beobachtet werden, da für diese niederenergetischen Linien ein hoher Konversionsfaktor zu erwarten ist. Um trotzdem einen Anhaltspunkt für die Energien der ersten beiden angeregten Zustände des $^{231}_{92}\text{U}$ zu bekommen, wurden die entsprechenden Niveaus der benachbarten Kerne $^{233}_{92}\text{U}$, $^{229}_{90}\text{Th}$ und $^{231}_{90}\text{Th}$ betrachtet.

Tabelle 18: Energien der ersten beiden angeregten Zustände des Grundzustandsbandes für $^{233}_{92}\text{U}$, $^{229}_{90}\text{Th}$ und $^{231}_{90}\text{Th}$

Spin	$^{233}_{92}\text{U}$	$^{229}_{90}\text{Th}$	$^{231}_{90}\text{Th}$
7/2+	40,35 keV	42,4 keV	42 keV
9/2+	92,0 keV	97,1 keV	97 keV

Wie in Tabelle 18 zu sehen ist, sind die Energien dieser Niveaus untereinander sehr ähnlich. In Analogie wurde angenommen, daß die ersten beiden angeregten Zustände des $^{231}_{92}\text{U}$ bei ca. 42 keV bzw. bei ca. 97 keV liegen.

Im Bild 16 ist das Zerfallsschema des $^{231}_{93}\text{Np}$ dargestellt, wie es sich aus Rechnungen mit dem Programm RITZ ergibt. In einer ersten Rechnung wurden die Energien 42 keV und 97 keV als Näherungswerte für die ersten beiden angeregten Niveaus des $^{231}_{92}\text{U}$ angenommen. Als Ergebnis wurden drei Niveaus bei 416,2 keV, bei 420,8 keV und bei 481,6 keV eingeführt. Von allen drei Niveaus gehen jeweils zwei Gammaübergänge zum Grundzustand und zum ersten angeregten Niveau aus. Die Energie dieses $7/2^-$ -Niveaus ergibt sich nach RITZ zu 44,8 keV. Nach Gleichung 4 errechnet

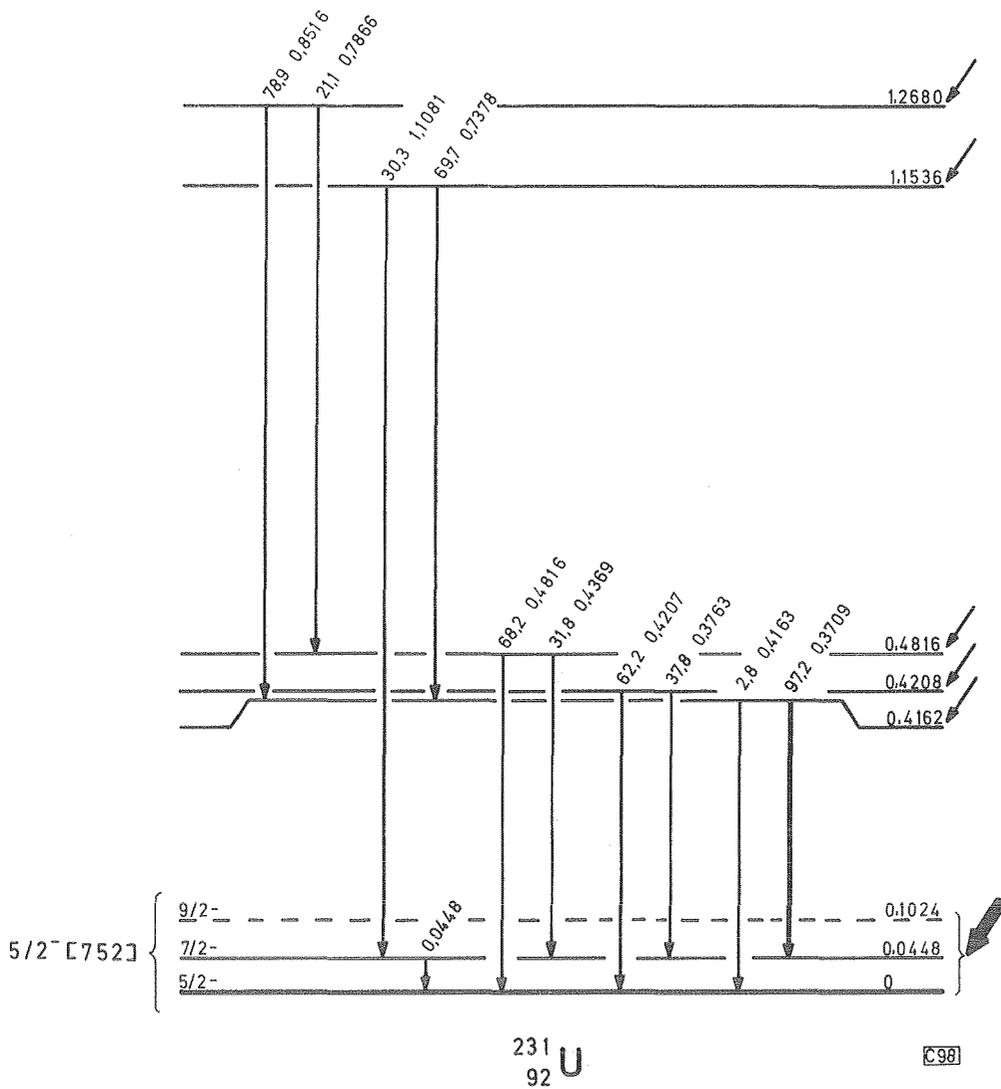


Abb. 16: Das Zerfallsschema des $^{231}_{93}\text{Np}$

sich die Energie des $9/2^-$ -Niveaus zu 102,4 keV. Als Ergebnis weiterer Rechnungen mit RITZ können aufbauend auf den bislang eingeführten Energieniveaus zusätzlich 4 Gammalinien in das Niveauschema eingeordnet werden, wenn man 2 weitere Niveaus bei 1153,6 keV und bei 1268,0 keV annimmt. 5 Gammalinien mit den Energien 263,8 keV, 348,4 keV, 484,7 keV, 715,5 keV und 837,3 keV konnten nicht in dieses erweiterte Schema eingeordnet werden.

Für die Niveaus bei 416,2 keV, bei 420,8 keV und bei 481,6 keV wurden Berechnungen der theoretischen relativen, reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für Übergänge zum Grundzustandsband durchgeführt. Da bei allen drei Niveaus Übergänge zum

Grundzustand mit Spin $5/2^-$ sowie zum ersten angeregten Zustand mit Spin $7/2^-$ beobachtet werden, wurden die Berechnungen für die Fälle ausgeführt, daß die Ausgangsniveaus den Spin $3/2$, $5/2$ oder $7/2$ besitzen. Der Vergleich mit den experimentellen Werten zeigte keine Übereinstimmung, so daß keine Angaben über die Spins der drei Niveaus gemacht werden können.

Da von den nicht zugeordneten Gammalinien die beiden Peaks mit 263,8 keV und 348,4 keV Energie verhältnismäßig intensiv sind, wie aus der Tabelle 17 entnommen werden kann, ist es schwierig, genaue Angaben über die relative Häufigkeit der Populierung der einzelnen Niveaus beim Zerfall durch Elektroneneinfang zu machen. Da außerdem die Spins der Niveaus nicht bekannt sind, können die Gammaintensitäten nicht in Übergangintensitäten umgerechnet werden, da der Multipolcharakter der Gammaübergänge nicht bekannt und damit eine Korrektur für Konversion nicht möglich ist. Aus einem Vergleich der Intensität der $K_{\alpha+\beta}$ -Röntgenlinie mit der totalen Gammaintensität kann aber geschlossen werden, daß mindestens 90 % aller Zerfälle durch EC zum Grundzustandsband führen.

Magnusson u.a. (1) geben für die Häufigkeit des α -Zerfalls eine obere Grenze von 0,1 % an. Aus der Nachweisgrenze für den 511 keV-Vernichtungspeak wurde in der vorliegenden Arbeit ein oberer Wert von 0,1 % für die Häufigkeit des β^+ -Zerfalls ermittelt. Das Isotop ${}_{93}^{231}\text{Np}$ zerfällt somit zu mehr als 99,8 % durch Elektroneneinfang.

4. Literaturverzeichnis

- (1) L.B. MAGNUSSON, S.G. THOMPSON and G.T. SEABORG,
Phys. Rev. 78, 363 (1950)
- (2) W. SEELMANN-EGGEBERT, G. PFENNIG und H. MÜNZEL,
Nuklidkarte, 3. Auflage 1968
- (3) R.M. LESSLER, Univ. Calif. Rad. Lab. Report,
UCRL-8439, October 1958
- (4) M. HOLLSTEIN, H. MÜNZEL, G. PFENNIG and R. REUTER-WEISS,
J. inorg. nucl. Chem., 1970, Vol. 32, pp. 3159-3163
- (5) E.K. HYDE, Nuclear Properties of the Heavy Elements,
Vol. III, 1964
- (6) B.M. FOREMAN, W.M. GIBSON, R.A. GLASS, and G.T. SEABORG,
Phys. Rev. 116, 382 (1959)
- (7) LANDOLT-BÖRNSTEIN, Anregungsquerschnitte und Energietönung
von Kernreaktionen, Neue Serie, Springer Verlag,
Heidelberg und New York (in Vorbereitung)
- (8) F.L. MOORE, Analyt. Chem. 29, 941 (1957)
- (9) J. FLEGENHEIMER, Ph. D. Thesis, Cambridge University, 1959
- (10) F. SCHULZ und H. BELLEMANN, KFK 685, Dez. 1967
- (11) H. MÜNZEL und G. PFENNIG, Kernforschungszentrum Karlsruhe,
Externer Bericht 10/67-5
- (12) H. MÜNZEL und G. PFENNIG, Kernforschungszentrum Karlsruhe,
in Vorbereitung
- (13) A.H. WAPSTRA, Nucl. Phys. A97, 641 (1967)
- (14) R.E. WOOD, P.V. RAO and J.M. PALMS, Bull. Am. Phys. Soc. 13,
No. 4, 604 (1968)
- (15) B.P.K. MAIER, Zeitschr. f. Physik, No. 184, 143 (1965)

- (16) S. BJØRNHOLM, F. BÖHM, A.B. KNUTSEN and O.B. NIELSEN, Nucl. Phys. 42, 469 (1963)
- (17) L. VARNELL, Nucl. Phys. A144, 429-440 (1970)
- (18) S. BJØRNHOLM, J. BORGGREEN, D. DAVIES, N.J.S. HANSEN and J. PEDERSEN, Nucl. Phys. A118, 261-301 (1968)
- (19) Nuclear Data, B1-5 (1966)
- (20) W. LOURENS, B.O. TEN BRINK and A.H. WAPSTRA, Nucl. Phys. A152, 463-480 (1970)
- (21) M. ROTENBERG, R. BIVINS, N. METROPOLIS and J.K. WOOTEN, jr., The 3-j and 6-j symbols, the Technology Press, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge-Massachusetts, 1959
- (22) J. CHWASZCZEWSKA, R. KACZAROWSKI, J. RUDZINSKA, W. KURCEWICZ and J. ZYLICZ, Contrib. Intern. Symp. Nucl. Struct., Dubna, p. 59 (1968)
- (23) K.A. KELLER und H. MÜNDEL, KFK 1059, Nov. 1969
- (24) A.H. WAPSTRA, G.J. NIJGH and R. VAN LIESHOUT, Nuclear Spectroscopy Tables, North Holland (1959)
- (25) Nuclear Data, B 4-6 (1970)
- (26) N. TRAUTMANN, N. KAFFRELL, R. DENIG and G. HERRMANN, Proc. Intern. Protactinium Conf., 3 rd, Schloß Elmau, Germany (1969) (to be published)
- (27) D. HECK, KFK 1247, Juli 1970
- (28) R.G. ALBRIDGE, J.M. HOLLANDER, C.J. GALLAGHER and J.H. HAMILTON, Nucl. Phys. 27, 529 and 554 (1961)
- (29) M.J. ZENDER, Ph. D. Thesis, Vanderbilt University, Nashville, Tennessee, August 1966
- (30) T.D. THOMAS, R. VANDENBOSCH, R.A. GLASS and G.T. SEABORG, Phys. Rev. 106, 1228 (1957)

- (31) R. MOTTELSON and S.G. NILSSON,
Mat. fys. Skr. Dan. Vid. Selsk. 1, No. 8, 1959
- (32) C.M. LEDERER, J.M. HOLLANDER and I. PERLMAN,
Table of Isotopes, Wiley and Sons, New York (1967)
- (33) Nuclear Data Tables, A6-1, 1969
- (34) J.E. CLINE, Nucl. Phys. A 106, 481 (1968)
- (35) T.H. BRAID, R.R. CHASMAN, J.R. ERSKINE and A.M. FRIEDMAN,
Phys. Rev. C1, 275 (1970)
- (36) T. VON EGIDY, TH.W. ELZE and J.R. HUIZENGA, Nucl. Phys.
A 145, 306 (1970)
- (37) D.L. PRICE, R.E. CHRIEN, O.A. WASSON, M.R. BHAT, M. BEER,
M.A. LONE and R. GRAVES, Nucl. Phys. A 121, 630 (1968)
- (38) E.K. HYDE, I. PERLMAN and G.T. SEABORG,
Nuclear Properties of the Heavy Elements, Vol. 2 (1964)