

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

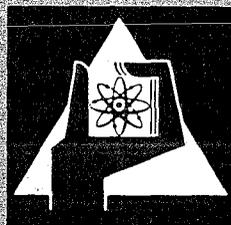
Juli 1972

KFK 1646

Institut für Radiochemie

Herstellung und Untersuchung der
protonenüberschüssigen Plutonium-Isotope 232 bis 235

U. Jäger



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

Juli 1972

KFK 1646

Institut für Radiochemie

Herstellung und Untersuchung der
protonenüberschüssigen Plutonium-Isotope
232 bis 235 *)

von
Uwe Jäger

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

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Zusammenfassung

Der Zerfall der Plutoniumisotope 232 bis 235 wurde durch γ - und α -Spektroskopie untersucht. Bei den vorwiegend durch Elektroneneinfang zerfallenden Isotopen Pu-233 und Pu-235 wurden 27 bzw. 15 Gammalinien gefunden und Zerfallsschemata vorgeschlagen. Bei den Isotopen Pu-232 und Pu-234 wurde der α -Zerfall untersucht und dabei die Halbwertszeiten und die Energien der α -Strahlung bestimmt.

Abstract

The decay of the plutonium isotopes, 232 to 235, were analysed by γ - and α -spectroscopy. For the isotopes predominantly decaying by electron capture viz., Pu-233 and Pu-235, 27 and 15 γ -lines were detected respectively and decay schemes were proposed. The half lifes and the energies of α -radiation from Pu-232 and Pu-234 were determined.

Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Einleitung	1
2. Experimenteller Teil	2
2.1 Auswahl der Bestrahlungsbedingungen	2
2.2 Bestrahlungen	5
2.3 Chemische Trennung	7
2.4 Meßanordnung	11
2.5 Auswertung	12
3. Ergebnisse und Diskussionen	14
3.1 Plutonium-235	14
3.1.1 Das $K^{\pi}=5/2^{+}$ -Grundzustandsband	15
3.1.2 Das $K^{\pi}=5/2^{-}$ -Band	21
3.1.3 Das $K^{\pi}=3/2^{-}$ -Band	22
3.1.4 Die Niveaus 936,7 keV und 944,7 keV	27
3.1.5 Die mittlere Anregungsenergie des Np-235 und die partielle Halbwertszeit für Elektroneneinfang von Pu-235	28
3.2 Plutonium-233	29
3.3 Plutonium-234	34
3.4 Plutonium-232	36
4. Literaturverzeichnis	40

1. Einleitung

In den vergangenen Jahren wurden eine Reihe von Untersuchungen an Transuranisotopen mit dem Ziel durchgeführt, die Systematik der Zerfallseigenschaften und der Anregungszustände für diese schweren Kernarten zu ermitteln. Dabei ergaben sich einige interessante Ergebnisse (1),(2),(3). Bei diesen Zusammenstellungen konnten protonenüberschüssige Plutoniumisotope kaum berücksichtigt werden, da nicht genügend experimentelle Daten vorhanden waren. Diese Arbeit wurde deshalb mit dem Ziel unternommen, den Zerfall der Plutoniumisotope Pu-232, Pu-233, Pu-234 und Pu-235 eingehender zu untersuchen.

Im Jahre 1951 berichtete Orth (4) über die Entdeckung des Pu-232 mit einer Halbwertszeit von 36 min. Thomas, Vandenbosch et al. (5) beschrieben 1957 das Plutoniumisotop Pu-233 mit 20 min Halbwertszeit. Außer den Halbwertszeiten und den Alpha-Zerfallsenergien wurden in beiden Arbeiten keine weiteren Zerfallsdaten veröffentlicht. Seither sind keine Arbeiten über die beiden Plutoniumisotope erschienen.

In den letzten zwölf Jahren gab es auch keine Veröffentlichung über das 1949 erstmals beschriebene Pu-234. Die Daten einiger Arbeiten über dieses 9-Stunden-Isotop sind in Nuclear Data Sheets (9) zusammengefaßt.

Das Pu-235 mit einer Halbwertszeit von 26 min ist bisher am besten untersucht. Zuerst wurde es 1951 von Orth (4) beschrieben. Weitere Daten wurden 1971 von Gorman und Asaro (6) und Keller (7),(8) veröffentlicht, die zwei bzw. fünf Gammalinien entdeckten und in ein einfaches Zerfallsschema einordneten.

Die gewünschten Plutoniumisotope wurden durch Bestrahlungen am Karlsruher Isochron-Zyklotron erzeugt und vor der Untersuchung chemisch von den Fremdaktivitäten abgetrennt.

Bei allen Isotopen wurden die Energien der Gamma- bzw. Alpha-Strahlung und deren Intensitäten bestimmt und soweit möglich Zerfallsschemata vorgeschlagen. In allen Fällen brachten die Untersuchungen verbesserte Werte der Halbwertszeiten.

Zum Druck eingereicht am 26.7.1972

2. Experimenteller Teil

2.1 Auswahl der Bestrahlungsbedingungen

Am Karlsruher Isochron-Zyklotron stehen als Projektile u.a. Alpha-Teilchen und Deuteronen zur Verfügung. Zur Herstellung der gewünschten neutronenarmen Plutoniumisotope können demzufolge z.B. (d,xn)- oder (α ,xn)-Reaktionen benutzt werden. Wie ein Ausschnitt aus der Nuklidkarte (10) in Abb. 1 zeigt, kommen als Targetmaterialien U-233, U-235 und Np-237 in Frage.

	Am 234? 2,6 m			Am 237 ~ 13 h	Am 238 60 μ s 1,9 h	Am 239 12,1 h	Am 240 0,9 ms 51 h	Am 241 433 a 5,49; 5,44 ... 0,060; 0,026 ... 7,3; 3,1 1+120+620	Am 242 14 m 152a 16a
Pu 232 36 m	Pu 233 20 m	Pu 234 9 h	Pu 235 26 m	Pu 236 2,85 a 5,77; 5,72 a 170	Pu 237 45,6 d	Pu 238 86,4 a 5,50; 5,46 a 500 or 16,8	Pu 239 2,44 $\cdot 10^6$ a 5,14; 5,14; 5,11 ...	Pu 240 6600 a 5,17; 5,12 ...	Pu 241 140 a 4,90; 4,85 a 382 or 1009
Np 231 50 m	Np 232 13 m	Np 233 35 m	Np 234 4,4 d	Np 235 410 a	Np 236 22 h >5000 a a 2800	Np 237 2,14 $\cdot 10^6$ a 4,78; 4,76 0,087; 0,029 a 170 or 0,019	Np 238 50,8 h 0,3; 1,2 1,03; 0,99 a 1600	Np 239 2,35 d 0,4; 0,7 0,11; 0,28 0,23 a 35+25 or <1	Np 240 7,5 m 67 m 0,2; 0,9 0,35; 0,57 0,60; 0,27 0,60 0,45
U 230 20,8 d 5,89; 5,82 a 25	U 231 4,2 d 5,45 0,026; 0,084 a 100	U 232 71,7 a 5,32; 5,26 a 78 or 77	U 233 1,62 $\cdot 10^5$ a 4,82; 4,78 a 48,6 a 527,7	U 234 0,0005 12,47 $\cdot 10^5$ a 4,77; 4,72 a 95	U 235 0,705 26 m 7,1 $\cdot 10^8$ a 4,39; 4,36 4,18; 0,14 100,3 579,5	U 236 2,39 $\cdot 10^7$ a 4,49; 4,44 a 6	U 237 6,75 d 0,2 0,060; 0,21 a 100	U 238 4,51 $\cdot 10^9$ a 4,20; 4,15 a 273	U 239 23,5 m 1,2; 1,3 0,075 a 22 or 14
Pa 229 1,4 d 5,96; 5,87 5,61 a 1500	Pa 230 17,5 d 5,41; 5,22; 5,30 4,92; 0,91; 0,44 a 1500	Pa 231 3,25 $\cdot 10^4$ a 5,01; 4,95 0,027; 0,29 a 200 or 0,01	Pa 232 1,32 d 0,3; 1,3 0,77; 0,87; 0,16 a 700	Pa 233 27,4 d 0,3; 0,6 0,31 a 22+21	Pa 234 1,18 m 6,75 h 0,23 0,14 0,98; 0,95 0,8; 1,1 a 50 or 200	Pa 235 24,4 m 1,4 0,17; 0,32	Pa 236 9,0 m 0,2 0,64; 0,31	Pa 237 9,1 m 0,23 0,45; 0,33 0,85	Pa 238 2,3 m 2,1; 2,9 0,44; 0,68 1,01
Th 228 1,913 a 5,42; 5,34 0,085; 0,22 a 123	Th 229 7340 a 4,85; 4,90 4,81; 5,05 0,20; 0,14 a 32	Th 230 7,5 $\cdot 10^4$ a 4,68; 4,62 a 23	Th 231 25,6 h 0,3 0,084; 0,026 a	Th 232 1,39 $\cdot 10^{10}$ a 4,01; 3,95 a 7,4	Th 233 22,1 m 1,2 0,087; 0,029 0,45 a 1500; or 15	Th 234 24,10 d 0,093; 0,083 a 1,8	Th 235 <5 m 0,2 0,093; 0,083 a 1,8		

Abb. 1: Ausschnitt aus der Nuklidkarte (10)

Der überwiegende Teil der Reaktionsprodukte bei Bestrahlungen der Transurane mit geladenen Teilchen wird durch Kernspaltung erzeugt. Damit von den übrigen möglichen Reaktionen ein möglichst großer Anteil zu den gewünschten Plutoniumisotopen führt, sollte man das Targetmaterial so wählen, daß der Compoundkern eine möglichst niedrige Anregungsenergie hat.

Das auf Grund dieser Forderung als Targetmaterial gewählte U-233 führt durch $(\alpha,2n)$ -, $(\alpha,3n)$ -, $(\alpha,4n)$ - und $(\alpha,5n)$ -Reaktionen zu den gewünschten Plutoniumisotopen Pu-235, Pu-234, Pu-233 und Pu-232.

Um die optimalen Projektilenergien bestimmen zu können, müssen die Anregungsfunktionen bekannt sein. Für die $(\alpha,2n)$ - und $(\alpha,3n)$ -Reaktionen mit U-233 liegen experimentelle Daten vor (11). Die Kurven sind in Abb. 2 eingetragen.

Für die $(\alpha,4n)$ - und $(\alpha,5n)$ -Reaktionen gibt es keine experimentellen Daten. Im Falle der $(\alpha,4n)$ -Reaktion konnte die Anregungsfunktion dadurch abgeschätzt werden, daß die bekannten $(\alpha,4n)$ -Kurven für die Targetkerne U-234 bis U-238 (11) extrapoliert wurden, wie in Abb. 3 gezeigt wird.

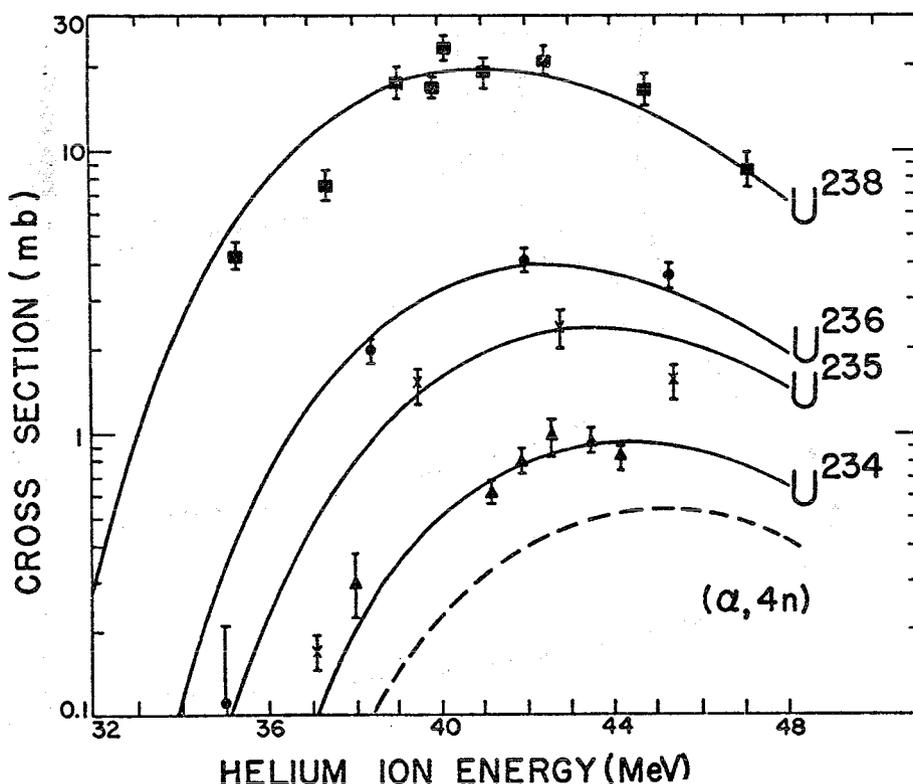


Abb. 3: $(\alpha,4n)$ -Anregungsfunktionen für einige Uranisotope
— experimentell bestimmter Verlauf (11)
----- extrapoliertes Verlauf für U-233

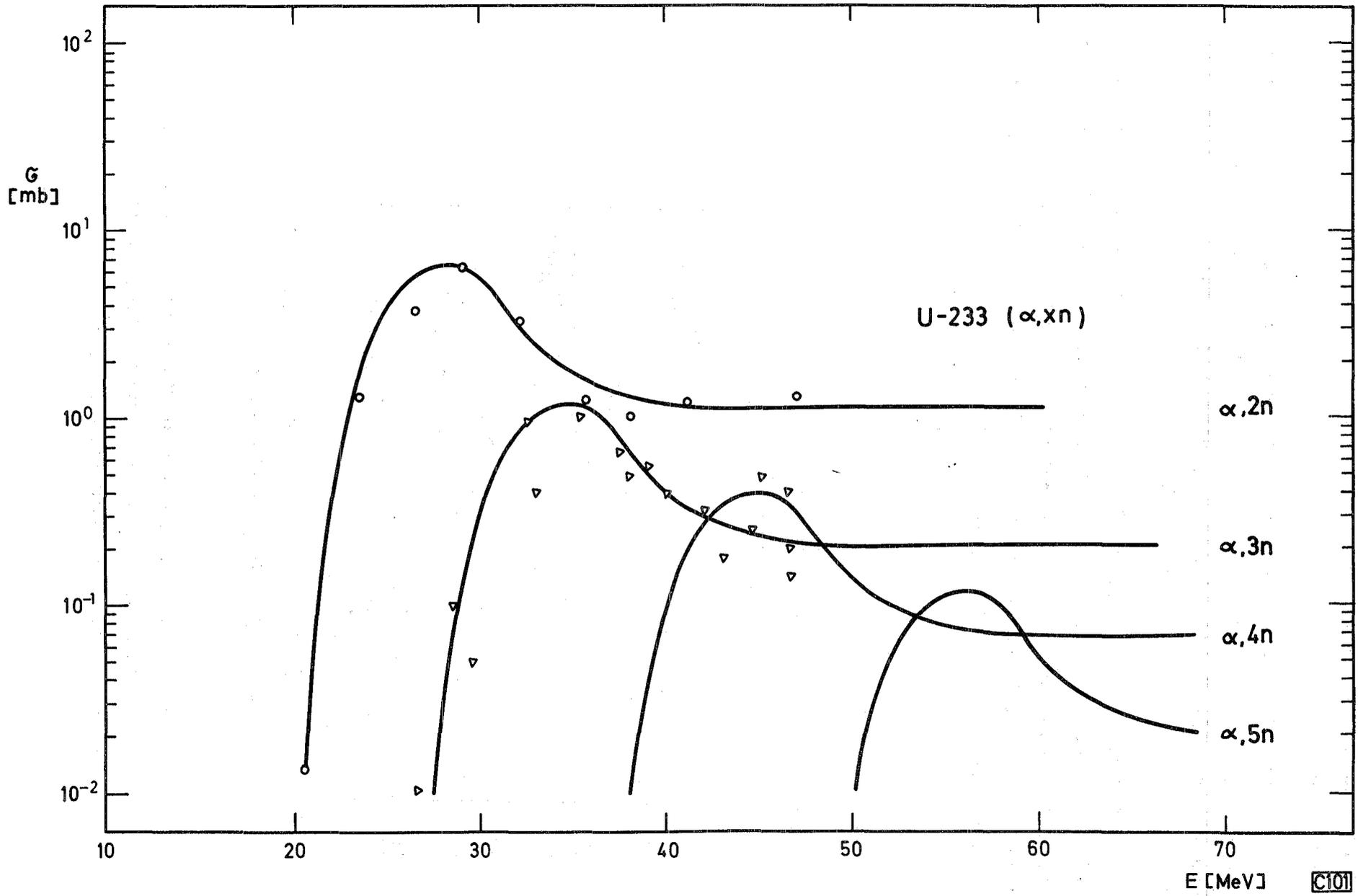


Abb. 2: Anregungsfunktionen der U-233 (α, xn)-Reaktionen

Die Anregungsfunktion für die $(\alpha,5n)$ -Reaktion wurde durch Extrapolation der Werte der $(\alpha,2n)$ -, $(\alpha,3n)$ - und $(\alpha,4n)$ -Reaktionen gewonnen.

In Abb. 2 sind die experimentellen und extrapolierten Anregungsfunktionen zusammengestellt. Die Projektilenergie sollte jeweils 2 bis 3 MeV über der Energie des maximalen Wirkungsquerschnittes liegen, damit möglichst hohe Aktivitäten erzielt werden. Die sich daraus ergebenden optimalen Werte der Projektilenergien sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Tabelle 1: Optimale α -Projektilenergien für das Targetmaterial U-233

Reaktion	optimale Projektilenergie
$\alpha,2n$	30 MeV
$\alpha,3n$	37 MeV
$\alpha,4n$	47 MeV
$\alpha,5n$	58 MeV

Mit Hilfe der Anregungsfunktionen läßt sich die zu erwartende Aktivität unter gegebenen Bestrahlungsbedingungen berechnen. Die dabei für die $(\alpha,2n)$ - bzw. $(\alpha,3n)$ -Reaktion erhaltenen Werte sollten eine Genauigkeit von 20 - 30 % aufweisen, während der Wert für die $(\alpha,5n)$ -Reaktion eine erheblich größere Unsicherheit besitzt, da die Anregungsfunktion durch zweimalige Extrapolation erhalten wurde. Jedoch stimmte die berechnete Aktivität der verschiedenen Plutoniumisotope in allen Fällen befriedigend mit den experimentellen Werten überein.

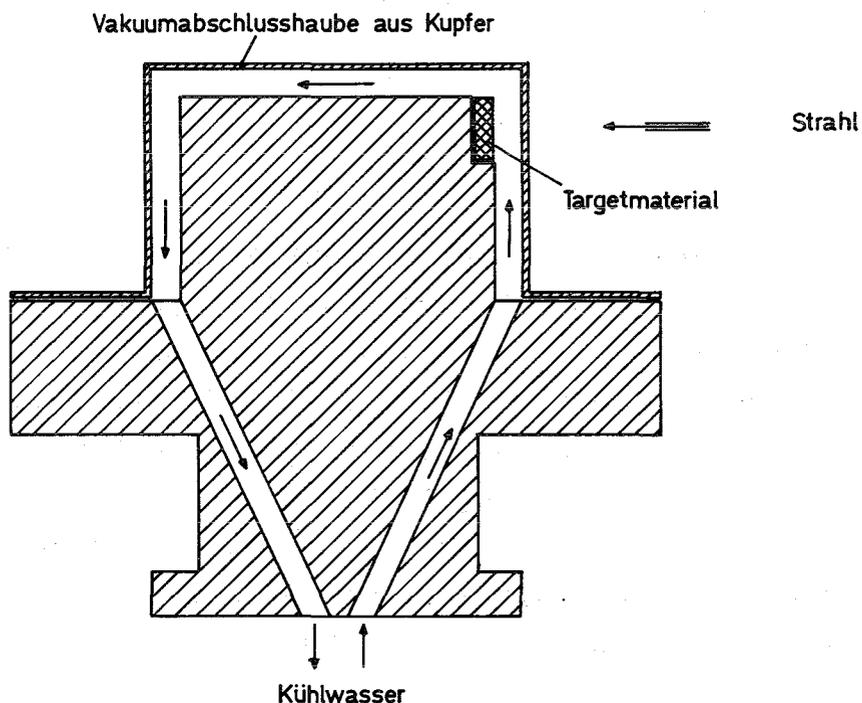
2.2 Bestrahlungen

Es wurden jeweils 40 mg UO_2 (mit angereichertem U-233, siehe Tabelle 2) zu einer Tablette von 3x6 mm gepreßt und in eine 20 μ m starke Aluminiumfolie eingepackt. Dieses Target wurde in einem speziell für das Karlsruher Isochron-Zyklotron ent-

Tabelle 2: Zusammensetzung des Targetmaterials

Isotop	Isotopenhäufigkeit in %
U-233	99,687
U-234	0,250
U-235	0,013
U-238	0,050

wickelten Targethalter (12) eingespannt. In dieser in Abb. 4 gezeigten Anordnung wird das Target während der Bestrahlung vom Kühlwasser umspült, so daß mit Teilchenströmen bis zu 20 μ A im Innenstrahl des Zyklotrons bestrahlt werden konnte. Die Bestrahlungsdauer betrug 20 - 40 min.



C108

Abb. 4: Vereinfachte schematische Darstellung des Wasser-targets

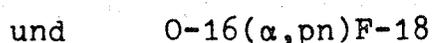
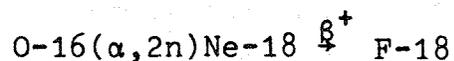
Dem Vorteil der hohen Strahlstromstärke in diesem Targetkopf steht der Nachteil gegenüber, daß die Teilchen zunächst eine Kupferschicht (0,2 mm) und eine Wasserschicht (1,5 mm) durchdringen. Das bedeutet einen Energieverlust der Projektilen und eine Energieaufspreizung. Ein zweiter und viel gewichtigerer Nachteil ist, daß sich während der ersten Minuten der Bestrahlung durch thermische Ausdehnung die Kupferhülle verformt, und damit die definierte Dicke der absorbierenden Wasserstrecke verändert wird. Nach Erreichen des thermischen Gleichgewichtes bleibt die auf das Target auftreffende Energie konstant. Diese nichtreproduzierbaren Veränderungen führen zu unvorhersehbaren Verschiebungen der Projektilenergie.

Um die tatsächliche Energie während der Bestrahlung zu ermitteln, mußte eine Monitorfolie mitbestrahlt werden. Anfängliche Versuche mit Aluminium verliefen sehr unbefriedigend. Gute Ergebnisse brachte eine vor das Target gespannte 5 µm starke Goldfolie. Aus dem Verhältnis der Aktivität der verschiedenen Au(α,xn)-Reaktionsprodukte wurde mit Hilfe der gut bekannten Anregungsfunktionen (13), (14) die tatsächliche Bestrahlungsenergie bestimmt. Auf diese Weise konnte die Energie des eingefallenen Strahles auf ± 1 MeV ermittelt werden.

Durch die genaue Kenntnis der Energie konnte eine eindeutige Zuordnung der Gammalinien zu den verschiedenen Plutoniumisotopen getroffen werden.

2.3 Chemische Trennung

Bei der Bestrahlung von U-233 mit α-Teilchen entstehen in der Hauptsache Spaltprodukte. Daneben werden außer den gewünschten Plutonium-Aktivitäten über (α,pxn)- und (α,αxn)-Reaktionen auch Isotope der Elemente Neptunium und Uran sowie deren Tochteraktivitäten gebildet. Aus dem Sauerstoff des Uranoxides entsteht vorwiegend durch folgende Reaktionen eine starke F-18-Aktivität:



Weitere Fremdaktivitäten werden in der das Target umhüllenden Aluminiumfolie erzeugt.

Die chemische Trennung soll die gewünschte Plutonium-Aktivität möglichst so gut separieren, daß die übrigen Produkte beim Spektroskopieren nicht mehr stören. Die dazu notwendige chemische Prozedur wurde unter Verwendung bekannter Trennverfahren (15), (16), (17), die noch modifiziert und verbessert wurden, zusammengestellt, um den Forderungen nach kurzer Trennzeit und großem Dekontaminationsfaktor gerecht zu werden.

Durch die Flüssig-Flüssig-Extraktion mit Hilfe von 2-Thenoyltrifluoraceton (TTA) können Neptunium und Plutonium von anderen Fremdaktivitäten getrennt werden. TTA bildet mit Metallionen Chelatverbindungen, die in nichtpolaren Lösungsmitteln löslich sind. Der Verteilungskoeffizient dieser Chelatverbindungen ist stark pH-abhängig. In stark salpetersaurer Lösung werden z.B. vorwiegend Pa und Zr extrahiert, während Neptunium und Plutonium in der wässrigen Phase zurückbleiben.

Zur Trennung von Np und Pu aus der Lösung werden beide in den vierwertigen Zustand überführt und dann gemeinsam mit TTA aus 1 m salpetersaurer Lösung extrahiert. Um das Np-Pu-Gemisch zu trennen, wird das Plutonium zum dreiwertigen Zustand reduziert, der nicht extrahierbar ist und Neptunium (IV) mit TTA extrahiert.

Das bestrahlte UO_2 wird mit der Aluminium-Umhüllung in 5 ml HNO_3 (8 m) und 0,5 ml HCl (10 m) unter Erwärmung aufgelöst. Die Lösung wird mit 5 ml TTA (0,5 m in Xylol) geschüttelt und die wässrige Phase über mit Wasser befeuchtetes Filterpapier in einen Schütteltrichter gegeben und ein zweites Mal mit TTA extrahiert. Diese Konzentration der Lösung von TTA (0,5 m in Xylol) wurde auch bei späteren Extraktionen benutzt.

Das in der wässrigen Phase verbleibende Plutonium und Neptunium werden zusammen mit dem Aluminium mit NH_4OH als Hydroxide ausgefällt. Anschließend wird zentrifugiert und dekantiert. Der Niederschlag wird in 1 ml HNO_3 (6 m) gelöst und zur Zerstörung von Plutonium-Polymeren erhitzt. Zur Reduktion zum dreiwertigen Plutonium wird mit 1 ml Hydroxylaminhydrochlorid (1 m) und 2,5 ml Wasser erhitzt. Danach wird die Lösung in einen gekühlten Scheidetrichter gegeben und zur Oxidation mit

2,5 ml NaNO_2 (1 m) versetzt. Vierwertiges Plutonium und vierwertiges Neptunium werden mit 5 ml TTA extrahiert. Die organische Phase wird über ein mit Xylol befeuchtetes Filter in einen neuen Scheidetrichter gegeben. Anschließend werden die Transurane mit 5 ml HNO_3 (10 m) zurückextrahiert.

Nach Zusatz von Lanthan-Träger zur wässrigen Phase, in der sich Np und Pu befinden, werden die Hydroxide erneut mit NH_4OH gefällt. Dieser Reduktions-Oxidationszyklus und die gemeinsame Extraktion der Actiniden werden wiederholt, um die Spaltprodukte quantitativ zu entfernen. Der Niederschlag wird mit 1 ml HNO_3 (10 m) unter Erwärmung gelöst. Danach wird Neptunium in den vierwertigen und Plutonium in den dreiwertigen Zustand übergeführt. Dies geschieht durch Zugabe einer Lösung von 2 ml Hydroxylaminhydrochlorid (5 m), 1 ml Lösung FeCl_2 (2 m) und 6 ml H_2O . Dann wird zweimal mit je 6 ml TTA extrahiert, wobei Pu (III) in der wässrigen Phase zurückbleibt. Die Hydroxide werden wieder ausgefällt, und nach Zusatz von Flußsäure wird Fluor mit Schwefelsäure abgeraucht. Der Rückstand wird in ca. 4 ml HNO_3 aufgenommen und in einem kleinen Plastikfläschchen zur Messung gebracht. Die Dauer des gesamten Trennverfahrens betrug etwa 45 min.

Zur Messung der niederenergetischen Gammastrahlung mußten - bedingt durch die Geometrie des Siliziumdetektors - feste Präparate benutzt werden. Deshalb wurde durch Zugabe von NH_4OH das Plutonium am Eisenhydroxyd mitgefällt und mit Hilfe einer Hahn'schen Nutsche abfiltriert. Das Filterpapier mit dem etwa 1-2 mm dicken Präparat wurde auf einem flachen Präparathalter befestigt, mit einer dünnen Folie abgedeckt und zur Messung gebracht.

Die Herstellung des α -Präparates erfolgte durch Elektrodeposition. Nach dem zweiten Reduktions-Oxidationszyklus wurde mit 2 ml HCl (10 m) rückextrahiert. Zu der wässrigen Phase wurden dann 5 ml NH_4Cl (4 m) hinzugefügt und mit ca. 1,6 ml NH_4OH auf pH 4,4 eingestellt. Auf ein als Kathode dienendes Platinblech wurde das Plutonium in einer Elektrolysezelle abgeschieden. Die Stromdichte betrug etwa 1 A/cm^2 bei ca. 6 V. Nach ungefähr 15 min wurde die Abscheidung abgebrochen. Es wurde ermittelt, daß nach dieser Zeit etwa 65 - 70 % abge-

schieden sind (Abb. 5). Um organische Reste zu entfernen, wurde das Präparat über einer Flamme geglüht und in den für die Messung notwendigen Halter eingespannt und gemessen.

Nach dem zweiten Reduktions-Oxidationszyklus sind in der Lösung neben den Plutonium-Isotopen auch die Neptunium-Isotope enthalten. Wegen der Zeitersparnis wurde diese Lösung zur Elektrodeposition verwendet. Das bedeutet also, daß das Neptunium mit abgeschieden wird und neben dem Plutonium in den Meßpräparaten zu finden ist.

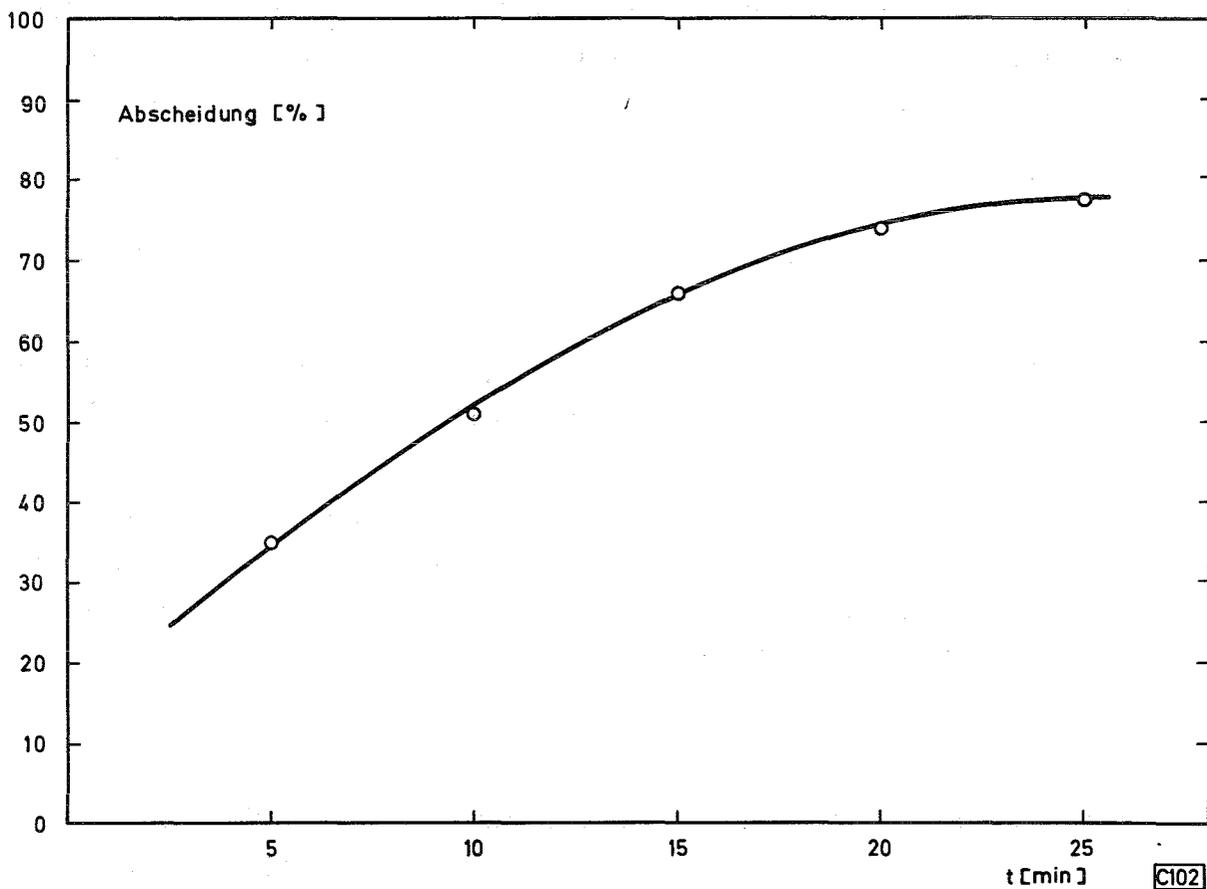
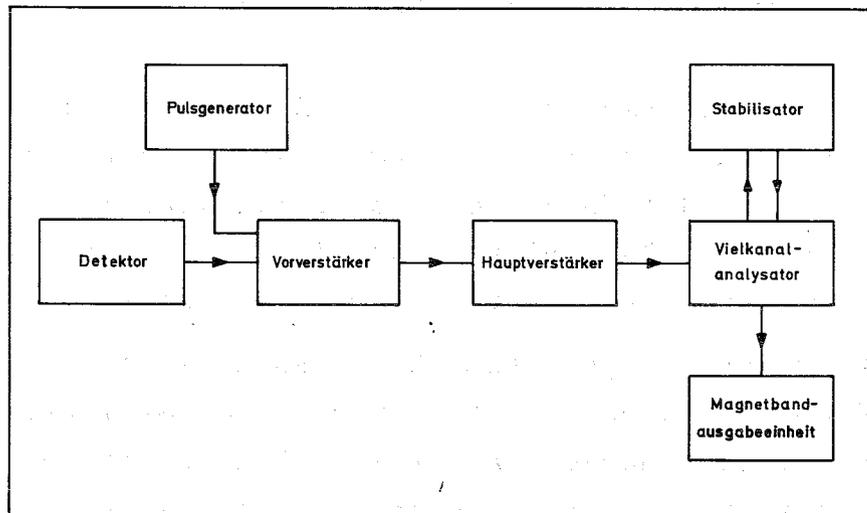


Abb. 5: Die zeitliche Abhängigkeit der Abscheidung bei der Elektrodeposition (34)

2.4 Meßanordnung

Die Meßanordnung zur Aufnahme der Gamma-Spektren ist in Abb. 6 schematisch dargestellt.



C90

Abb. 6: Die Meßanordnung zur Aufnahme der Gamma-Spektren

Für den lithiumgedrifteten Germaniumdetektor werden von der Lieferfirma Canberra folgende Daten angegeben:

Effektives Volumen:	27 cm ³
Ansprechwahrscheinlichkeit:	3,8 % bei 1,33 MeV, bezogen auf einen 3"x3" NaJ (Tl) Kristall
Peak zum 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 montiert, der in einen mit flüssigem Stickstoff gefüllten Kryostaten eintaucht.

Direkt an der Detektoreinheit ist ein ladungsempfindlicher, rauscharmer Vorverstärker angebracht. Die Impulse werden mit Pulsformung in einem Spektroskopieverstärker weiterverstärkt.

Zur Impulshöhenanalyse diente ein 50 MHz Analog-Digital-Converter (ADC) und ein Digital-Processor mit 4096 Kanälen der Firma Geoscience. Die Ausgabe erfolgt mit einer Ausgaberate von ca. 500 Kanälen pro Sekunde auf Magnetband. Mit Hilfe eines digitalen Stabilisators und eines Präzisionspulsgebers wird die Meßanordnung gegen Verstärkungsänderungen stabilisiert. Die Auflösung der gesamten Anordnung beträgt 3,2 keV (FWHM) bei 1,33 MeV.

Zur Messung niederenergetischer γ -Linien wurde ein lithiumgedrifteter Siliziumdetektor mit einem rauscharmen Vorverstärker (18) benutzt. Nach dem Passieren des Verstärkers wurden die Impulse in einem 512-Kanal-Analysator der Fa. Nuclear Data analysiert. Die Ausgabe erfolgte über Lochstreifen.

Die α -Spektren wurden mit einem Oberflächensperrschichtzähler BPY54-350/A der Firma Valvo aufgenommen, dem der Vorverstärker 118 A der Fa. Ortec nachgeschaltet war. Die weitere Verstärkung und Analyse der Impulse erfolgte in den eingangs beschriebenen Einheiten.

2.5 Auswertung

Die Auswertung der aufgenommenen Spektren erfolgte an der IBM 360/85 Rechenanlage des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Es wurden die Programme RAINER, HUNTER, ENERGIE, ROFAB, MARTIN, MORA und BRITTA benutzt.

Zunächst wurden die gemessenen Spektren mit Hilfe des Programms RAINER (19) gezeichnet.

Das Programm FABRICIUS (20), das ursprünglich für die IBM 7074 geschrieben wurde, mußte für den Gebrauch an der IBM 360/85 umgeschrieben werden. Gleichzeitig wurde es modifiziert und verbessert, um den speziellen Wünschen für die Auswertung der Spektren besser gerecht zu werden. Dieses Programm steht nunmehr unter dem Namen HUNTER auf der Programmbibliothek. Es ermittelt Kanallagen, Halbwertsbreiten, Höhen und Intensitäten aller Peaks und Doppelpeaks, wobei der Untergrund berücksichtigt wird. Weiterhin werden die Fehler aller Größen berechnet.

Das neuerstellte Programm ENERGIE ordnet mit Hilfe der Ergebnisse einiger Eichpeaks allen gewünschten Kanallagen die Energie zu.

ROFAB (21) ordnet die mit dem Programm HUNTER ermittelten Gammalinien zur Weiterverarbeitung mit MARTIN (22), das seinerseits aus dem Abfall der Intensität der ermittelten Linien die Halbwertszeit und Intensität zum Bestrahlungsende ermittelt.

MORA ist eine für die IBM 360/85 umgeschriebene Version von RADAR IV (23). Es unterscheidet sich von dem Originalprogramm durch eine vereinfachte und modifizierte Eingabe. Dieses Programm ermittelt aus der Abnahme der Intensitäten eines Peaks Halbwertszeit und Intensität zu einer Bezugszeit, wobei mehrere Komponenten getrennt werden können. Besonders zur Analyse der meist komplexen Röntgenlinien ist dieses Programm geeignet. Es werden weiterhin Fehler und Fehlerverteilung berechnet.

Das Programm BRITTA (24) dient der Analyse von nicht oder schlecht aufgelösten Mehrfachpeaks.

3. Ergebnisse und Diskussion

3.1 Plutonium 235

Die Halbwertszeit wurde aus mehreren Versuchen, sowohl aus dem Abfall der K-Röntgenlinien als auch aus dem Abfall der zwei intensivsten Gammalinien ermittelt. Die Ergebnisse der Computeranalyse ergaben eine Halbwertszeit von $25,6 \pm 0,1$ min (Abb.7).

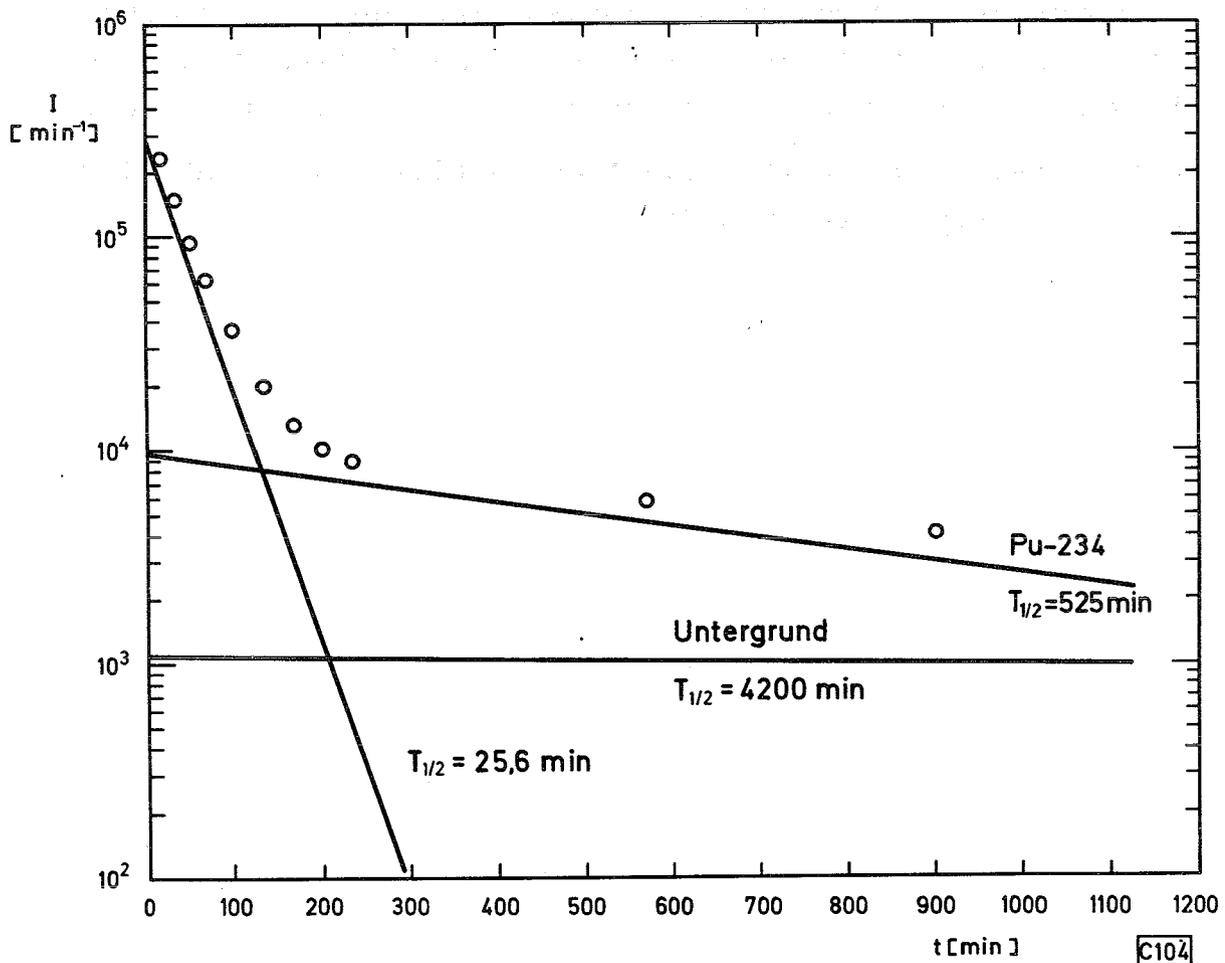


Abb. 7: Abfall der K-Röntgenlinien

Abb. 8 zeigt ein unmittelbar nach der chemischen Trennung mit dem Ge-Li-Detektor aufgenommenes Gamma-Spektrum. In Abb. 9 ist ein Spektrum mit dem Bereich von den L-Röntgenlinien bis zu den K-Röntgenlinien dargestellt. Dieser Energiebereich wurde mit dem Si-Li-Detektor gemessen.

Die Auswertung der Gamma-Spektren ergab die in Tabelle 3 zusammengestellten 15 Gammalinien. Außerdem sind die von anderen Autoren publizierten Daten zum Vergleich angegeben.

Die bei Keller (8) aufgeführten Gammalinien von 235,8 keV und 535,0 keV sind dem Zerfall des Isotops Plutonium-233 zuzuordnen. Die ursprüngliche Zuordnung zum Pu-235 ist mit großer Wahrscheinlichkeit auf die Schwierigkeit der Energiebestimmung bei Verwendung von Wassertargets für die Bestrahlung (siehe 2.2) zurückzuführen.

Bei der Bestimmung der Intensität der 49,3 keV-Linie tritt zwischen den Ergebnissen von Keller und dieser Arbeit eine große Diskrepanz auf. Eine Erklärung ist darin zu suchen, daß die Bestimmung der Ansprechwahrscheinlichkeit des Ge-Li-Detektors in diesem Energiebereich Schwierigkeiten bereitet. Durch Verwendung des Si-Li-Detektors konnten diese Schwierigkeiten umgangen werden, so daß der in dieser Arbeit gefundene Wert eine erheblich höhere Genauigkeit hat.

Auf der Grundlage der vorliegenden Untersuchungen und der Systematik der Zerfallseigenschaften der Nachbarkerne wurde versucht, ein Zerfallsschema für den Elektroneneinfang von Pu-235 aufzustellen. Das Ergebnis ist in Abb. 10 dargestellt. In das Schema konnten alle Linien mit Ausnahme der 940,3 keV-Linie eingeordnet werden. Die Begründung und Diskussion des Schemas wird im folgenden gegeben.

3.1.1 Das $K^{\pi} = 5/2^{+}$ -Grundzustandsband

Die Energieniveaus von Np-235 sollten denen von Np-237 und Np-239 ähnlich sein. Wie bei diesen schwereren Isotopen ist auch für Np-235 ein $5/2^{+}$ [642] Niveau als Grundzustandsband zu erwarten (6).

Der erste angeregte Zustand in den beiden Nachbarkernen Np-237 und Np-239 liegt bei ca. 32 keV und zerfällt überwiegend durch

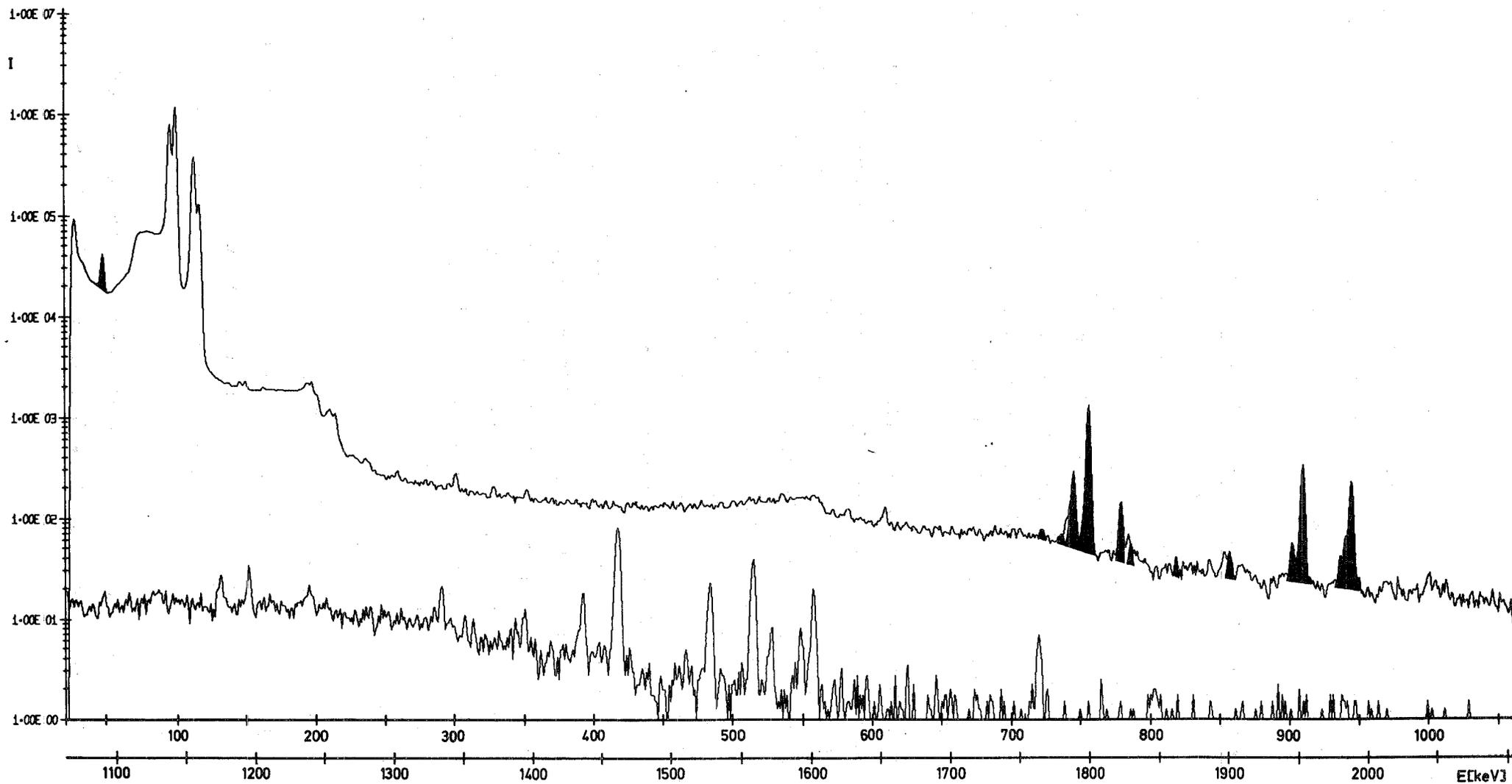


Abb. 8: Gamma-Spektrum von Pu-235 unmittelbar nach der chemischen Trennung
(Pu-235 schwarz, sonstige Peaks Np-234 und Untergrund)

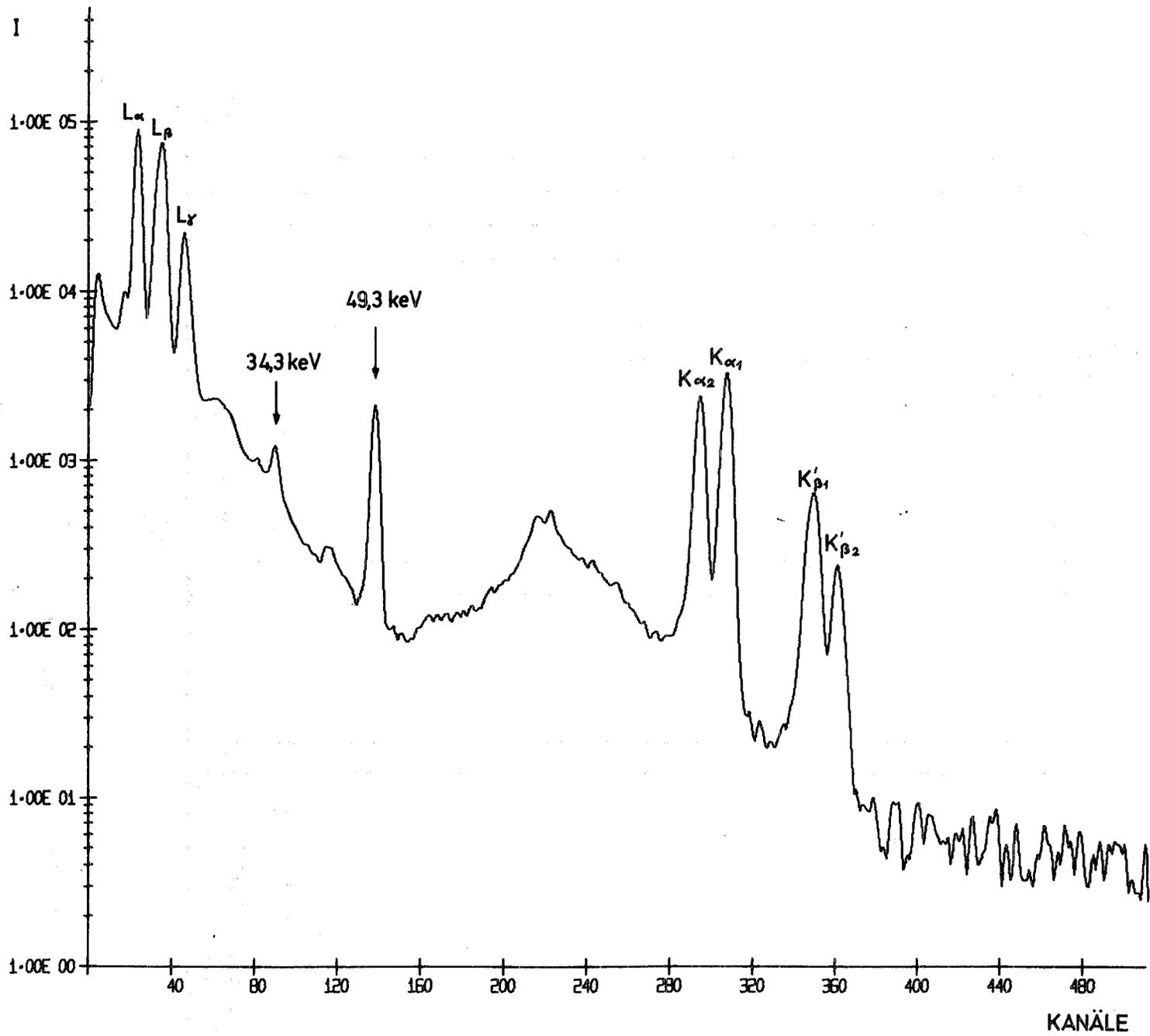


Abb.9: Spektrum der niederenergetischen Strahlung von Pu-235 unmittelbar nach der chemischen Trennung

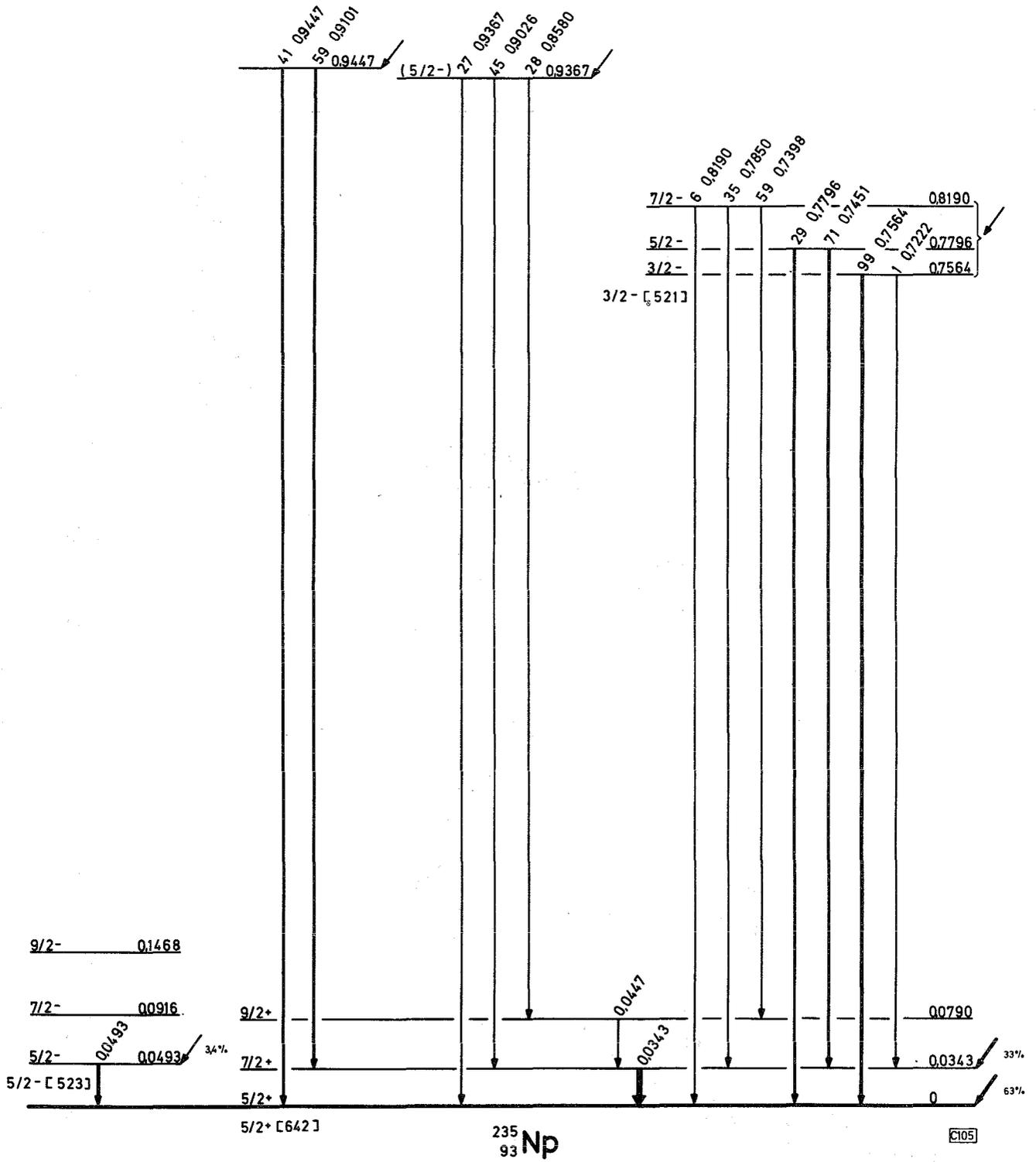


Abb. 10: Zerfallsschema des Pu-235

Tabelle 3: Kernzerfallsdaten von Pu-235

	diese Arbeit		Keller (8)		Gorman und Asaro (6)	
Halbwertszeit	25,6 ± 0,1 min		25,9 ± 0,1 min		24,3 ± 0,1 min	
	Energie	Intensität	Energie	Intensität	Energie	Intensität
Energien der γ-Linien in keV und Intensität pro 1000 K- Röntgenquanten	34,3 ± 0,3	2,71 ± 0,5			34,1 ± 0,1	3,3 ± 0,5
	49,3 ± 0,3	27,7 ± 0,7	48,8	65	49,0 ± 0,1	26,7 ± 0,7
			235,8	1,3		
			535,0	1,3		
	722,2 ± 0,5	0,05 ± 0,02				
	739,8 ± 0,4	0,14 ± 0,03				
	745,1 ± 0,3	1,05 ± 0,10				
	756,4 ± 0,3	5,62 ± 0,19	756,7	5,8		
	779,6 ± 0,3	0,42 ± 0,04				
	785,0 ± 0,4	0,08 ± 0,03				
	819,0 ± 0,6	0,02 ± 0,01				
	858,0 ± 0,5	0,13 ± 0,04				
	902,6 ± 0,4	0,21 ± 0,03				
	910,1 ± 0,3	1,93 ± 0,06	910,0	1,6		
	936,7 ± 0,4	0,12 ± 0,04				
	940,3 ± 0,4	0,20 ± 0,03				
	944,7 ± 0,3	1,34 ± 0,05				

M1-Strahlung mit 1,4 % E2-Beimischung (25) zum Grundzustand. Das analoge Niveau im Np-235 liegt bei 34,3 keV. Die Energie von Rotationszuständen deformierter Kerne kann nach folgender Gleichung berechnet werden:

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

Die Konstanten E_0 und $\frac{\hbar^2}{2J}$ können aus zwei bekannten Zuständen ermittelt werden.

Für den $9/2^+$ -Zustand dieser Rotationsbande errechnet sich daraus mit $E_0 = -42,9$ keV und $\frac{\hbar^2}{2J} = 4,9$ keV eine Energie von 78,4 keV. Dieses Niveau wird von höheren Niveaus schwach populiert, wie das Schema (Abb. 10) zeigt. Aus den Differenzen der Linien ergibt sich eine Energie von 79,0 keV in guter Übereinstimmung mit dem nach Gl. 1 errechneten Wert. Direkte Übergänge von Plutonium durch Elektroneneinfang sollten wegen der großen Spindifferenz von kleiner Wahrscheinlichkeit sein. Es wurde weder eine Linie von 79,0 keV noch eine Linie von ca. 44,7 keV - der weit wahrscheinlichere Übergang zum $7/2^+$ -Zustand - beobachtet. Der Grund ist in der relativ geringen Intensität, den großen Konversionsfaktoren und der hohen Untergrundstrahlung in diesem Energiebereich zu suchen. Selbst wenn wider Erwarten bis zu zehn Prozent des Elektroneneinfangs direkt zu diesem Niveau geführt hätten, wären die Linien unter der Nachweisgrenze geblieben.

Um die Zahl der pro 100 Zerfälle durch Elektroneneinfang emittierten Quanten einer bestimmten Linie zu ermitteln, ist es zunächst erforderlich, aus der Intensität der K-Röntgenlinien auf die Gesamtzahl der Zerfälle zu schließen. Dazu sollte das Verhältnis des Einfanges aus der K-Schale zum Einfang aus den anderen Schalen bekannt sein. Die Formeln von Brysk und Rose (26) geben dafür theoretische Werte.

Mit dem Q-Wert des Elektroneneinfanges von 1130 keV (6) ergibt sich

$$EC(L_I)/EC(K) = 0,21,$$

$$EC(M+N+\dots)/EC(L) = 0,52,$$

$$EC(L_{II})/EC(L_I) = 0,14$$

und $EC(L_{III}) = 0$.

Daraus folgt $EC(L+M+N+\dots)/EC(K) = 0,364$

Das bedeutet, daß unter Berücksichtigung der Fluoreszenzausbeute nur bei 62 % der Zerfälle ein K-Röntgenquant entsteht. Kombiniert man dieses Ergebnis mit dem theoretischen Konversionskoeffizienten von 195 (6) und der in Tabelle 3 angegebenen Intensität für die 34,3 keV Linie, dann ergibt sich, daß 33 % der Zerfälle durch Elektroneneinfang zu diesem Niveau führen. Zusätzlich kommen noch etwa 0,25 % durch Übergänge von höheren Niveaus dazu.

3.1.2 Das $K^{\pi} = 5/2^-$ -Band

In der Arbeit von Gorman und Asaro (6) über den α -Zerfall von Am-239 wurden weitere Übergänge gefunden, die eine $5/2^-$ [523] Rotationsbande anregen. Die Niveaus der Rotationsbanden für die Kerne Np-235, Np-237 und Np-239 sind in Abb. 11 gezeigt. Der $5/2$ -Zustand dieser Rotationsbande liegt bei 49,3 keV. Der Übergang von diesem Niveau zum Grundzustand ist vom E1-Typ (6) und hat einen theoretischen Konversionskoeffizienten von 1. In Analogie zum 34,3 keV-Niveau errechnet sich daraus eine Populierung durch 3,4 % der Zerfälle durch Elektroneneinfang.

Höherenergetische Niveaus dieser Bande konnten nicht beobachtet werden; sie sollten auch wegen der höheren Spindifferenz eine wesentlich kleinere Häufigkeit haben.

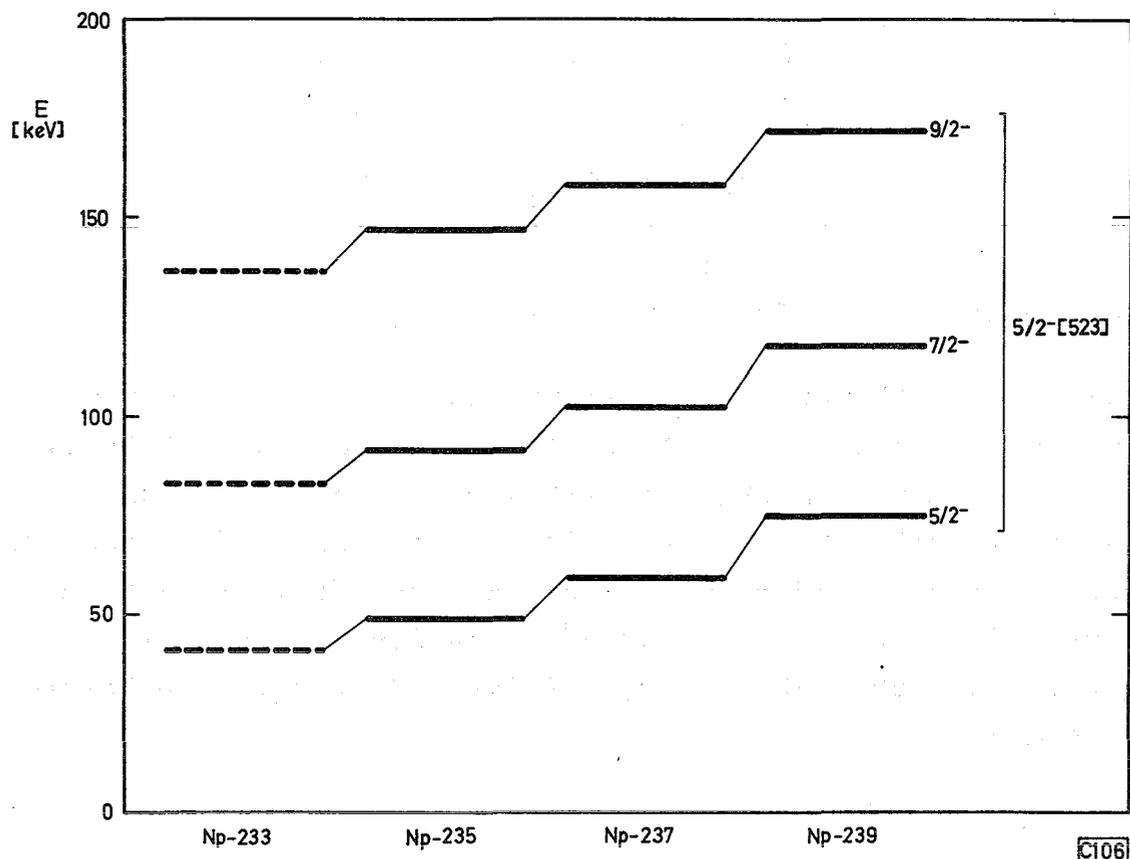


Abb. 11: Rotationsbanden $5/2^- [523]$ der Kerne Np-235, Np-237 und Np-239; ----- Werte für Np-233 extrapoliert

3.1.3 Das $K^\pi = 3/2^-$ -Band

Analogiebetrachtungen der Kerne Np-237 und Np-239 lassen einen $1/2^- [530]$ Zustand erwarten. Aus dem Nilsson-Diagramm (Abb. 12) kann man auch einen $3/2^- [521]$ Zustand ableiten, den man beispielsweise bei den benachbarten Kernen Am-239 und Am-241 findet (27), und der beim Np-237 oberhalb der $1/2^- [530]$ und $1/2^+ [400]$ Zustände liegt (28).

Vom Niveau 779,6 keV führen zwei Gamma-Übergänge zum Grundzustand und zum 34,3 keV Niveau. Um eine Spinzuordnung zu diesem Niveau treffen zu können, wird das Verhältnis der reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten aus den experimentellen Daten mit dem theoretischen Wert verglichen.

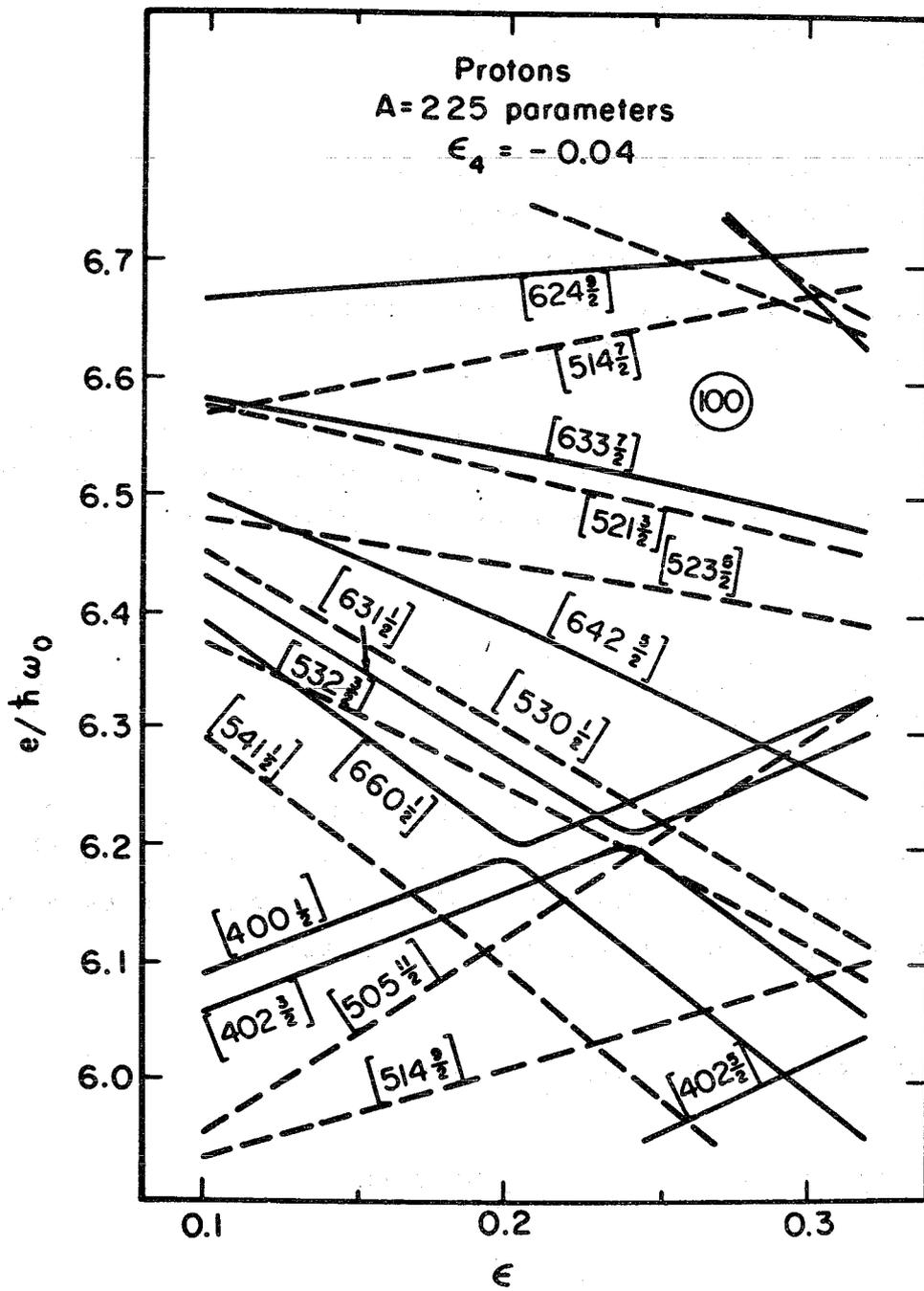


Abb. 12: Nilsson-Diagramm für ungerade Protonenzahlen (33)

Allgemein gilt für die Gamma-Übergangswahrscheinlichkeit

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

- $T_{(L)}$: Übergangswahrscheinlichkeit in sec^{-1}
 L : Multipolordnung des Übergangs
 ΔE : Energie der ausgesandten Strahlung
 $B_{(L)}$: Reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit
 c : Geschwindigkeit des Lichtes

Nach einer Umformung von Gl. 2 erhält man für den Vergleich zweier Übergangswahrscheinlichkeiten von einem Niveau i zu den Niveaus f und f' unter der Voraussetzung gleicher Multipolordnung L :

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

Dieser Quotient läßt sich aus den experimentellen Daten ermitteln. Für das Niveau 779,6 keV errechnet sich die relative reduzierte Übergangswahrscheinlichkeit für einen angenommenen E1-Übergang mit der Multipolordnung $L = 1$ zu:

$$\frac{B_{779,6}}{B_{745,1}} = \frac{15,6}{37,9} \cdot \left(\frac{745,1}{779,6}\right)^3 = 0,36$$

Für die Multipolordnung $L = 2$ ergibt sich

$$\frac{B_{779,6}}{B_{745,1}} = \frac{15,6}{37,9} \cdot \left(\frac{745,1}{779,6}\right)^5 = 0,33$$

Die reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten von einem Ausgangsniveau mit der K -Quantenzahl K_i und dem Spin I_i zu einem Niveau $K_f I_f$ bzw. $K_f' I_f'$, verhalten sich nach der Theorie wie die Quadrate der Vektoradditionskoeffizienten (Gl. 4).

$$\frac{B(L, I_i \rightarrow I_f)}{B(L, I_i \rightarrow I_f')} = \frac{\langle I_f, L, K_i (K_f - K_i) | I_i, L, I_f, K_f \rangle^2}{\langle I_f', L, K_i (K_f - K_i) | I_i, L, I_f', K_f \rangle^2} \quad \text{Gl. 4}$$

- L : Multipolordnung des Übergangs
 I_i : Spin des Ausgangsniveaus
 I_f, I_{f'} : Spin der Endniveaus
 K_i : K-Quantenzahl des Ausgangsniveaus
 K_f : K-Quantenzahl des Endniveaus

Die Koeffizienten, auch Clebsch-Gordan-Koeffizienten genannt, wurden einem Tabellenwerk entnommen (29). Die für K_f = 5/2 bei Np-235 in Frage kommenden Fälle sind in Tabelle 4 aufgeführt. Um nun einen Hinweis auf die Spinzunordnung zu erhalten, muß man die oben aus den experimentellen Daten erhaltenen Werte mit den entsprechenden Werten der Tabelle 4 vergleichen. Dieser Vergleich zeigt, daß die Fälle K_i=3/2, I_i=5/2; K_i=5/2, I_i=7/2 oder K_i=1/2, I_i=5/2 in Frage kommen könnten. Da im letzteren Fall der Übergang zum 9/2⁺-Zustand des Grundzustandsbandes (ca. 701 keV) mit der gleichen Intensität auftreten sollte wie die 779,6 keV-Linie, kann dieser Fall ausgeschlossen werden. Aus gleichen Gründen ist die Zuordnung zu einem Zustand K_i=5/2, I_i=7/2 nicht anzunehmen. Es handelt sich somit um einen K=3/2, I=5/2-Zustand. Der K=3/2, I=3/2-Zustand dieser Rotationsbande sollte ebenfalls häufig populiert werden, da das Pu-235 eine 5/2⁺-[633] Nilsson-Zuordnung des Grundzustandes hat (6). Auf Grund der experimentell gefundenen Gammalinien und deren Intensitäten könnte dieses Niveau bei 756,4 keV liegen.

Es wurde mit Hilfe von Gl. 1 die Energie des 7/2⁻-Zustandes dieser Rotationsbande berechnet: Mit E₀ = 739,0 keV und $\frac{\hbar^2}{2J} = 4,64$ keV errechnet sich die Energie zu 812,1 keV. Dieser Energie am nächsten kommt die experimentell nachgewiesene sehr schwache Gammalinie von 819,0 keV. Die Abweichung von dem berechneten Wert beträgt 0,9 %. Ein entsprechender Vergleich bei anderen Kernen zeigte Abweichungen bis zu 1,2 %. Die Abweichungen kommen durch Kopplungen mit anderen Rotationsbanden zustande (30). Ein Niveau bei 819,0 keV wird weiterhin durch die experimentell nachgewiesenen schwachen Linien bei 739,8 keV und 785,0 keV bestätigt. Eine Überprüfung der Zuordnung K=3/2, I=7/2 zu diesem

Tabelle 4: Clebsch-Gordan-Koeffizienten für $K_f = 5/2$

L	K_i	I_i	I_f	Clebsch-Gordan-Koeffizient	Quotient	L	K_i	I_i	I_f	Clebsch-Gordan-Koeffizient	Quotient	
1	3/2	5/2	5/2	0,286	0,40	2	1/2	7/2	5/2	0,048	0,167	
			7/2	0,714					7/2	0,286		
									9/2	0,455		0,63
1	3/2	7/2	5/2	0,036	0,094	2	3/2	3/2	5/2	0,429	0,75	
			7/2	0,381					7/2	0,571		
			9/2	0,583								
1	5/2	5/2	5/2	0,714	2,50	2	3/2	5/2	5/2	0,429	26,8	
			7/2	0,286					7/2	0,016		
									9/2	0,556		0,03
1	5/2	7/2	5/2	0,214	0,54	2	3/2	7/2	5/2	0,179	0,59	
			7/2	0,397					7/2	0,305		
			9/2	0,389					9/2	0,008		40
1	7/2	7/2	5/2	0,750	3,38	2	5/2	5/2	5/2	0,357	0,75	
			7/2	0,222					7/2	0,476		2,87
			9/2	0,028					9/2	0,167		
2	1/2	3/2	5/2	0,571	1,33	2	5/2	7/2	5/2	0,357	37,6	
			7/2	0,429					7/2	0,0095		
									9/2	0,379		0,03
2	1/2	5/2	5/2	0,214	0,42	2	7/2	7/2	5/2	0,417	1,04	
			7/2	0,508					7/2	0,400		2,52
			9/2	0,278					9/2	0,159		

Niveau mit Hilfe der relativen reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten ergibt keinen Widerspruch. Die entsprechenden Werte sind in Tabelle 5 zusammengestellt.

Tabelle 5: Vergleich der theoretischen und berechneten Werte der relativen reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten für das Niveau 819,0 keV

	theoretisch	diese Arbeit
$\frac{B_{819,0}}{B_{785,0}}$	0,094	0,14
$\frac{B_{819,0}}{B_{739,8}}$	0,061	0,068
$\frac{B_{785,0}}{B_{739,8}}$	0,653	0,49

3.1.4 Die Niveaus 936,7 keV und 944,7 keV

Vom Niveau 936,7 keV gehen drei Linien 936,7, 902,6 und 858,0 keV zum Grundzustandsband über. Die relativen reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten ergeben sich zu:

$$\frac{B_{936,7}}{B_{902,6}} = 0,54 \text{ und } \frac{B_{902,6}}{B_{858,0}} = 1,38 \text{ für } L = 1$$

$$\frac{B_{936,7}}{B_{902,6}} = 0,50 \text{ und } \frac{B_{902,6}}{B_{858,0}} = 1,25 \text{ für } L = 2$$

Damit kämen die Möglichkeiten $K=5/2, I=7/2$ oder $K=1/2, I=5/2$ in Betracht.

Wenn es ein $K=5/2, I=7/2$ -Zustand wäre, könnte es sich analog zum Np-237 und Np-239 nur um einen β -Vibrationszustand handeln, denn das Nilsson-Diagramm zeigt, daß kein $5/2$ -Zustand mehr auftreten kann. In diesem Fall sollte der $K=5/2, I=5/2$ -Zustand mit etwa

zweifacher Häufigkeit auftreten. Eine entsprechende Gammalinie wurde aber nicht gefunden, was gegen die $K=5/2, I=7/2$ -Zuordnung spricht.

Denkbar wäre auch eine $K=1/2, I=5/2$ -Zuordnung zu diesem Zustand. Weitere Zustände dieser Rotationsbande sollten zwar vorhanden sein, allerdings nur wenig populiert werden. Die beim Übergang zu niederenergetischeren Niveaus auftretenden Gammalinien würden wegen ihrer geringen Intensität wahrscheinlich unterhalb der Nachweisgrenze liegen.

Eine Spinzunordnung zu dem weiteren Niveau bei 944,7 keV ist mit den bisher vorliegenden experimentellen Daten nicht möglich.

3.1.5 Die mittlere Anregungsenergie des Np-235 und partielle Halbwertszeit für Elektroneneinfang von Pu-235

Die mittlere Anregungsenergie ergibt sich nach Keller (3) zu:

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

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

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

Damit errechnet sich $\langle E_A(\epsilon) \rangle = 19$ keV. Von Keller wurde aus der Systematik ein Wert von 320 keV (3) vorhergesagt.

Für die partielle Halbwertszeit des K-Einfangs t_K gilt:

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

q_K : Neutrinoenergie beim K-Einfang

Q_ϵ : Q-Wert für Elektroneneinfang

B_K : Bindungsenergie der K-Elektronen

$C_1 = 15,7 \pm 29$
 $C_2 = 4,21 \pm 1,01$ } für g-u-Kerne

Unter Berücksichtigung des Elektroneneinfangs der L-Schale gilt nach Keller:

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

mit t_ϵ : partielle Halbwertszeit des Elektroneneinfangs

q_{LII} : Neutrinoenergie beim LII Einfang

$\frac{L_{LII}}{L_K}$ bzw. $\frac{L_{LIII}}{L_{LII}}$: Z-abhängige Konstanten

Mit der nach Gleichung 5 aus den experimentellen Daten berechneten mittleren Anregungsenergie von 19 keV ergibt sich

$t_K = 17,5$ min und $t_\epsilon = 12,9$ min. Der so berechnete Wert für die Halbwertszeit ist um den Faktor zwei kleiner als der experimentell gefundene Wert von 25,6 min. Man kann daher annehmen, daß der Elektroneneinfang dieses Isotops um den Faktor zwei stärker gehemmt ist, als bei anderen g-u-Kernen.

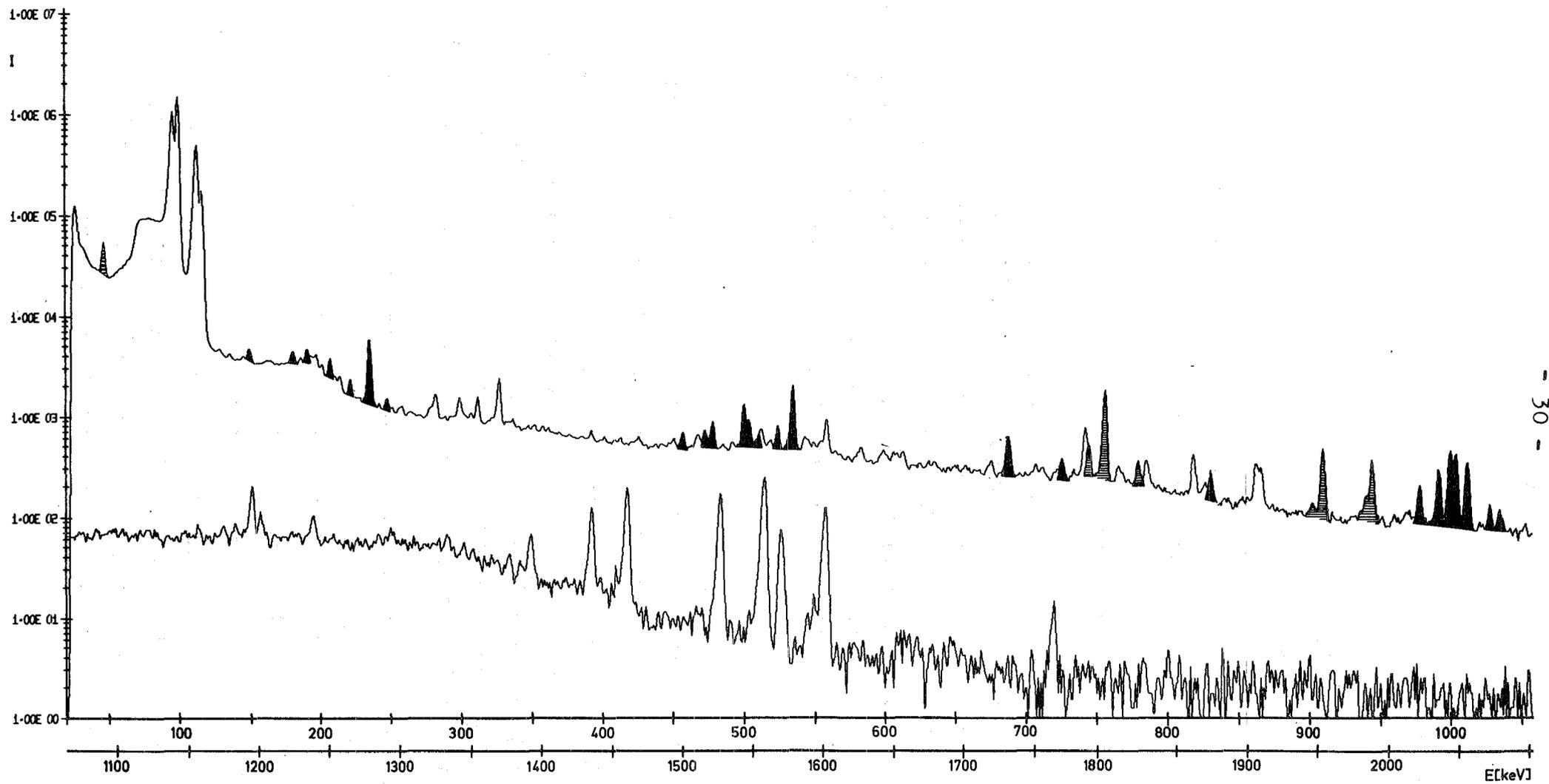
3.2 Plutonium-233

Abb. 13 zeigt ein unmittelbar nach der chemischen Trennung mit dem Ge-Li-Detektor aufgenommenes Gamma-Spektrum.

Die K-Röntgenlinien des gezeigten Spektrums sind wegen der Anwesenheit der verschiedenen Isotope des Plutoniums und des Neptuniums sehr komplex. Deshalb wurde die Halbwertszeit aus den beiden intensivsten Gammalinien bei 235,4 keV und 534,8 keV ermittelt. Fünf Versuche ergaben einen Mittelwert von $20,9 \pm 0,4$ min.

Insgesamt wurden in den gemessenen Spektren 27 Linien ermittelt, die dem Isotop Plutonium-233 zuzuordnen sind. In Tabelle 6 sind die Energien der Gammalinien und die relativen Intensitäten der Linien aufgeführt, wobei die Intensität der stärksten Linie bei 235,4 keV gleich 100 gesetzt wurde.

Auf der Grundlage der gefundenen γ -Linien wurde versucht ein Zerfallsschema aufzustellen. Dieses ist in Abb. 14 dargestellt. Bis auf die Linien 150,4 keV, 688,1 keV und 1004,0 keV konnten alle Linien in dieses Schema eingeordnet werden.



- 30 -

Abb. 13: Gammapektrum von Pu-233 unmittelbar nach der chemischen Trennung
 (Pu-233 schwarz, Pu-235 gestreift, sonstige Linien: Np-232, Np-233, Np-234 und Untergrund)

Tabelle 6: Gammaenergien und relative Intensitäten
(bezogen auf die Linie 235,4 keV) für Pu-233

Energie [keV]	relative Intensität
150,4 ± 0,3	15,2 ± 1,6
180,8 ± 0,4	12,0 ± 2,5
191,0 ± 0,3	13,0 ± 1,8
207,4 ± 0,3	23,8 ± 2,0
221,7 ± 0,4	11,8 ± 1,2
235,4 ± 0,3	100
247,4 ± 0,4	7,2 ± 1,9
457,4 ± 0,3	10,2 ± 2,1
473,2 ± 0,4	7,2 ± 1,5
478,3 ± 0,3	13,8 ± 1,7
500,3 ± 0,3	38,6 ± 3,5
504,0 ± 0,3	20,7 ± 2,4
512,4 ± 0,3	12,8 ± 2,8
524,4 ± 0,3	13,0 ± 2,1
534,8 ± 0,3	90,2 ± 3,6
558,8 ± 0,3	26,9 ± 2,5
583,3 ± 0,4	8,6 ± 2,0
688,1 ± 0,3	33,3 ± 2,8
726,2 ± 0,4	9,0 ± 1,4
830,9 ± 0,3	11,1 ± 1,3
978,1 ± 0,3	13,4 ± 2,3
991,7 ± 0,3	23,0 ± 2,3
1000,5 ± 0,3	18,0 ± 3,8
1004,0 ± 0,3	31,0 ± 3,2
1012,3 ± 0,3	28,2 ± 2,8
1028,4 ± 0,5	6,6 ± 1,7
1035,4 ± 0,5	5,7 ± 1,5

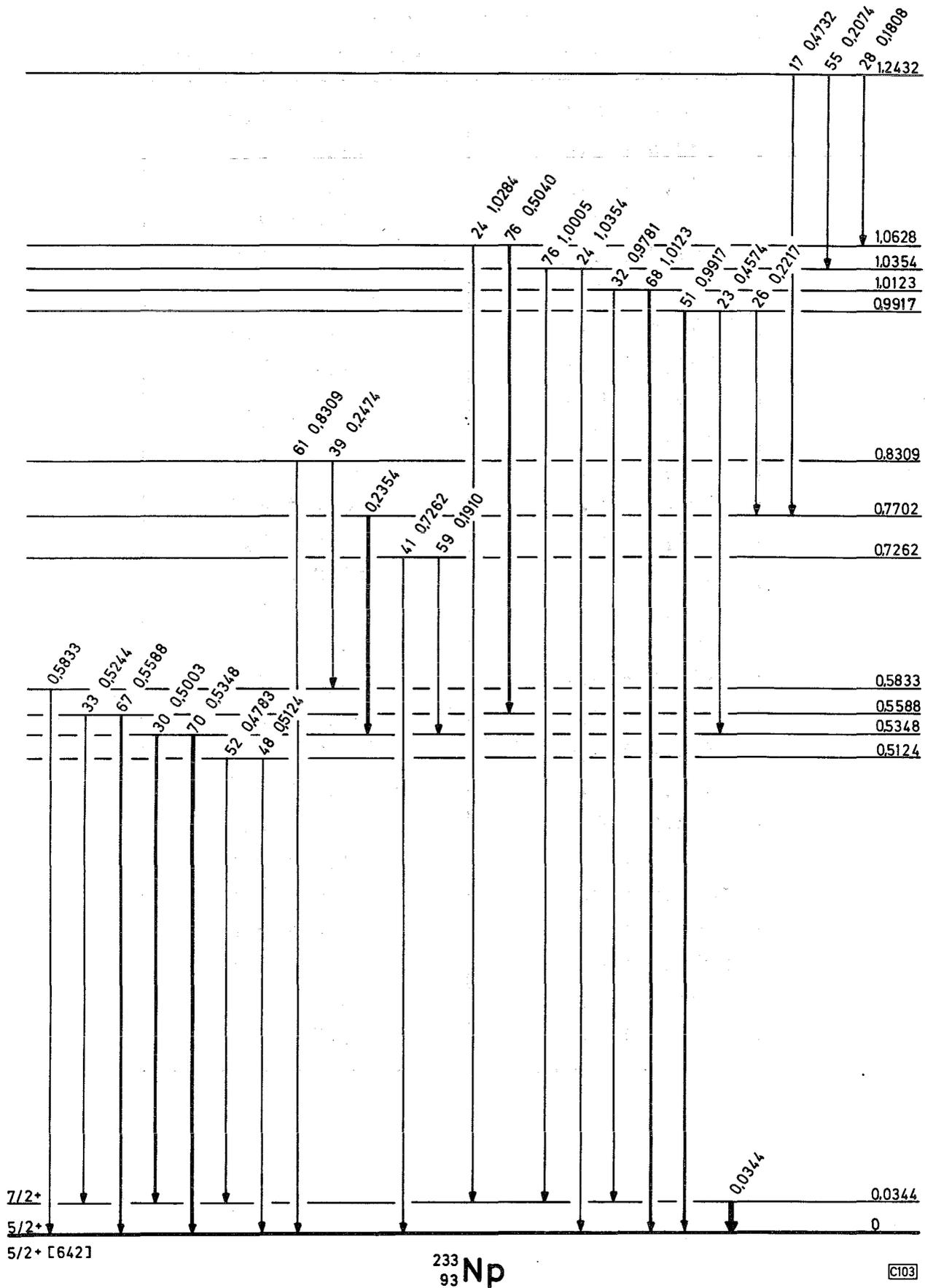


Abb. 14: Niveauschema des Np-233

Wie auch beim Np-235, Np-237 und Np-239 sollte der Grundzustand des Np-233 die Nilsson-Zuordnung $5/2^+$ [642] haben.

Der $7/2^+$ -Zustand dieser Rotationsbande liegt bei 34,4 keV, wie das Schema zeigt.

Das $9/2^+$ -Niveau wird bei ca. 80 keV erwartet, wie die Extrapolation der analogen Niveaus der Nachbarkerne in Abb. 15 zeigt. Es kann aus gleichen Gründen wie bei Np-235 nicht direkt beobachtet werden. Im Gegensatz zum Np-235 kann keine Linie gefunden werden, die von höheren Niveaus ausgehend dieses Niveau populiert.

Das $5/2^-$ -[523] Niveau, daß bei ca. 40 keV erwartet wird (vgl. Abb. 11), konnte nicht beobachtet werden, da es wegen der geringeren Intensität des Pu-233 (vgl. 2.1) und der etwas höheren Konversion unter der Nachweisgrenze liegen sollte.

Bei den höherenergetischen Niveaus wurde versucht, mit Hilfe der relativen reduzierten Übergangswahrscheinlichkeiten Aussagen

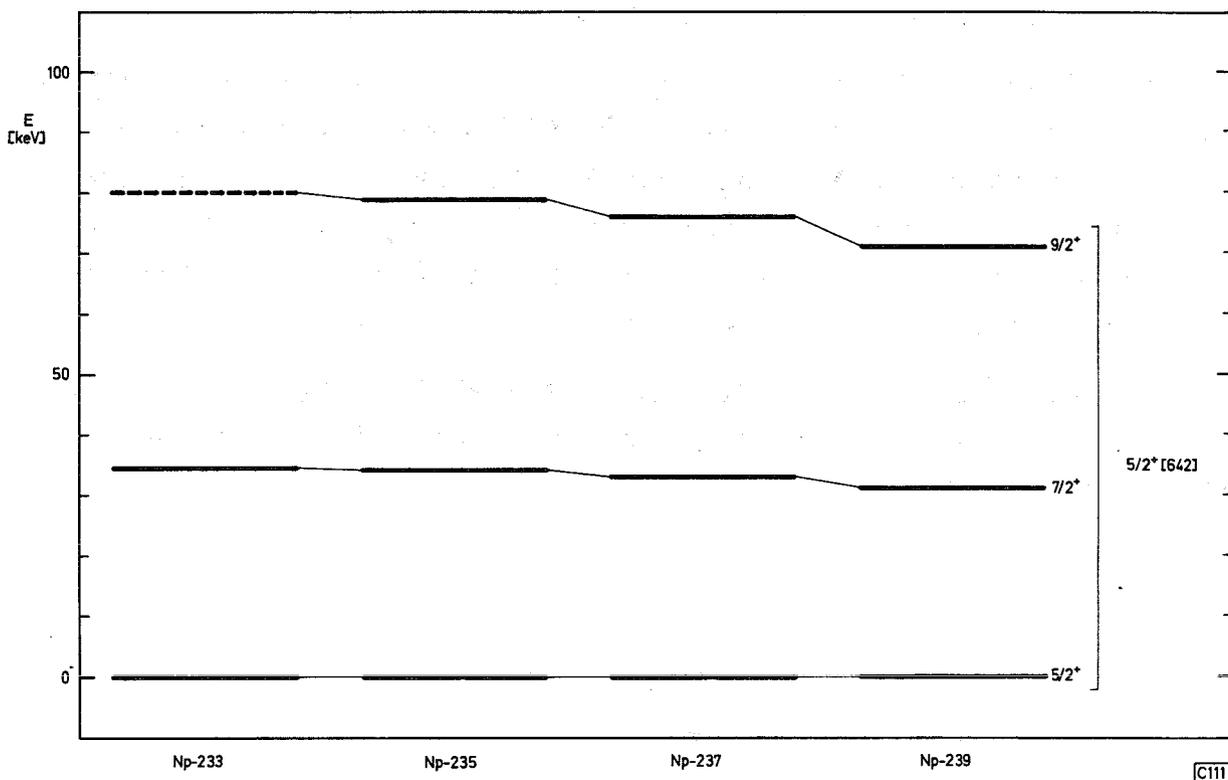


Abb. 15: Rotationsbanden $5/2^+$ [642]
(extrapoliertes Niveau gestrichelt)

über die Spinzuordnung zu machen. In keinem der untersuchten Fälle war jedoch eine zwingende Übereinstimmung vorhanden, so daß eine eindeutige Zuordnung der Niveaus zu bestimmten Nilsson-Quantenzahlen nicht möglich war.

3.3 Plutonium-234

Bei den Untersuchungen über den α -Zerfall des Plutoniums konnten die Linien des Pu-234 bei 6,151 MeV und 6,202 MeV (31) eindeutig identifiziert werden, wie aus dem Teilspektrum (Abb.16) zu ersehen ist.

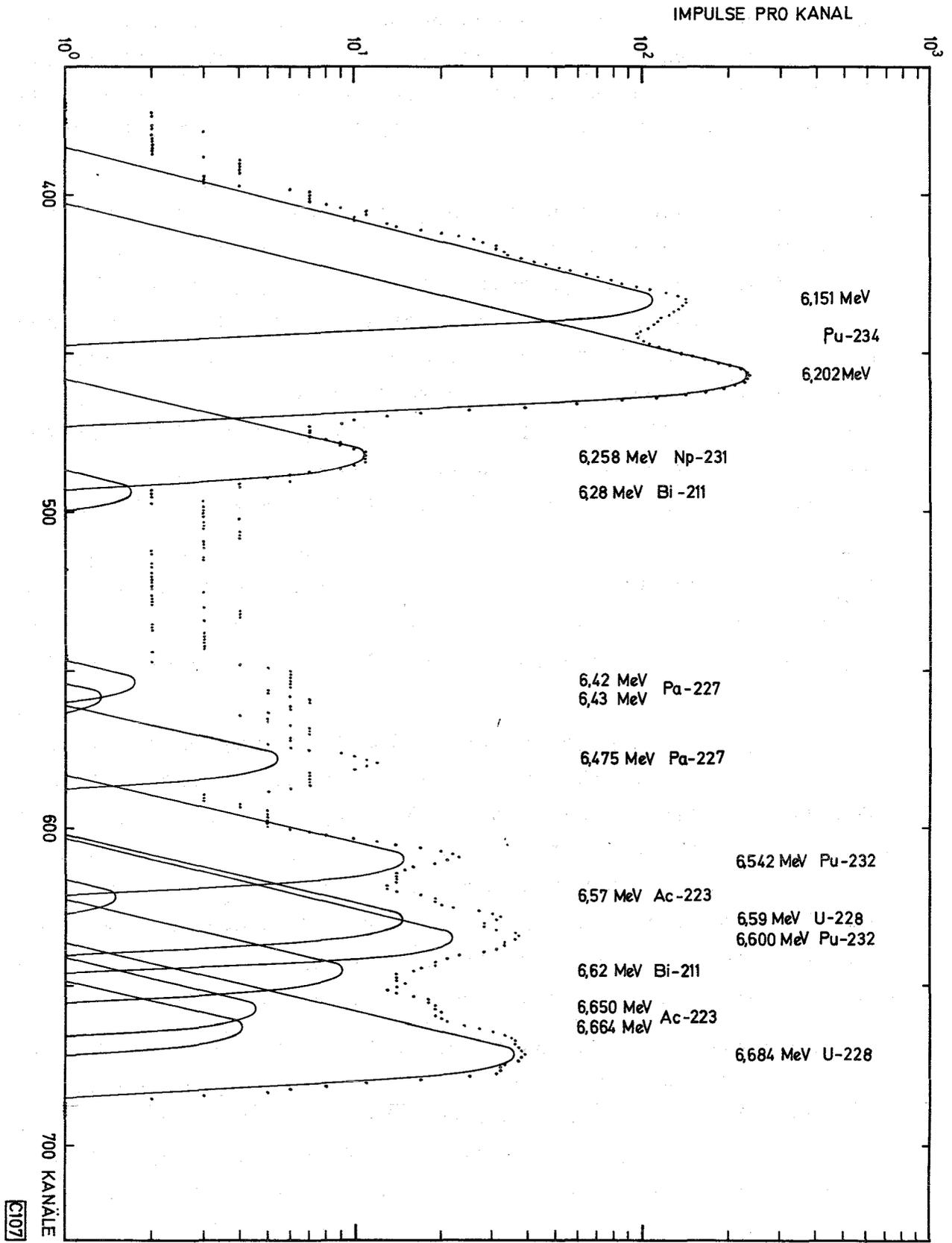
Aus der Abnahme der Intensität dieser Linien wurde die Halbwertszeit berechnet. Ein Mittelwert aus drei Versuchen lieferte eine Halbwertszeit von $8,8 \pm 0,1$ h. Die beim Zerfall durch Elektroneneinfang entstehenden Röntgenlinien wurden ebenfalls zur Analyse benutzt und bestätigen obige Halbwertszeit.

Gamma-Linien konnten nicht beobachtet werden. Aus dem Verhältnis der Röntgenlinien zur Nachweisgrenze für Gamma-Linien über 100 keV errechnet sich, daß eventuell vorhandene Linien eine kleinere Häufigkeit haben sollten als 0,4 % der Zerfälle.

Für das Verhältnis ϵ/α kann nur ein unterer Grenzwert angegeben werden. Die beim Übergang vom 2^+ -Niveau zum Grundzustand des U-230 auftretende Gammalinie von ca. 50 keV hat einen theoretischen Konversionskoeffizienten von 250. Mit diesem Wert und der Nachweisgrenze für diese nicht beobachtete Linie kann abgeleitet werden, daß das Verhältnis $\epsilon/\alpha > 1$ sein sollte.

Ein anderer Weg der Abschätzung dieses Wertes (vgl. 3.4) führt zu $\epsilon/\alpha > 9$. Nach den experimentellen Daten (31) ist dieser Wert $\epsilon/\alpha = 15,7$.

Abb. 16: Ausschnitt aus dem α -Spektrum



3.4 Plutonium-232

Die Bildung des Pu-232 wurde durch die Glieder der α -Zerfallsreihe - Pu-232 \rightarrow U-228 \rightarrow Th-224 \rightarrow Ra-220 \rightarrow Rn-216 \rightarrow Po-212 - eindeutig nachgewiesen. Die erste Messung begann ca. 60 Minuten nach dem Ende der Bestrahlung bzw. 20 Minuten nach der letzten chemischen Trennung. Daher sind alle Folgeglieder im Gleichgewicht mit Pu-232. Im Teilspektrum (Abb. 16) sind die Linien des Pu-232 und des U-228 dieser Reihe zu erkennen.

Aus dem Intensitätsabfall der ungestörten Alphalinien der Folgeglieder wurde die Halbwertszeit berechnet. Ein Mittelwert über mehrere Versuche lieferte für das Pu-232 eine Halbwertszeit von $34,1 \pm 0,7$ min. Zur Energieeichung wurden die gut bekannten α -Energien 6,151 MeV und 6,202 MeV des Pu-234 und die Linie 6,684 MeV des U-228 (32) als interner Standard herangezogen. Daraus ergeben sich für die zwei Linien, die dem Pu-232 zugeordnet werden, die Energien von $6,600 \pm 0,005$ MeV und $6,542 \pm 0,005$ MeV.

Als Differenz dieser beiden Alphalinien ergibt sich für den ersten angeregten Zustand des U-228 eine Energie von 58 keV. Dies ist in guter Übereinstimmung mit dem aus der Systematik in Abb. 17 erwarteten Trend.

Bei den umliegenden Kernen führen etwa 67 % bis 76 % der Alpha-Zerfälle zum Grundzustand des Tochterkerns. Die weiteren Zerfälle führen bis auf einen Anteil von weniger als 1 % zum ersten angeregten Zustand. Dabei ist als Tendenz zu beobachten, daß für Isotope die Übergänge zum Grundzustand mit sinkender Neutronenzahl geringer werden (Abb. 18). Die bei dem Alpha-Zerfall des Pu-232 beobachteten Intensitäten der Übergänge zum Grundzustand des U-228 von 62 % und zum ersten angeregten Zustand von ca. 38 % fügen sich gut in die beobachtete Systematik ein.

Da das Neptunium aus Gründen der Zeitersparnis nicht chemisch abgetrennt wurde, ist Np-231 mit seinen Folgeprodukten als störendes Produkt in den Spektren zu finden (vgl. Abb. 16). Die α -Energie des Np-231 wurde neu bestimmt zu $6,258 \pm 0,005$ MeV.

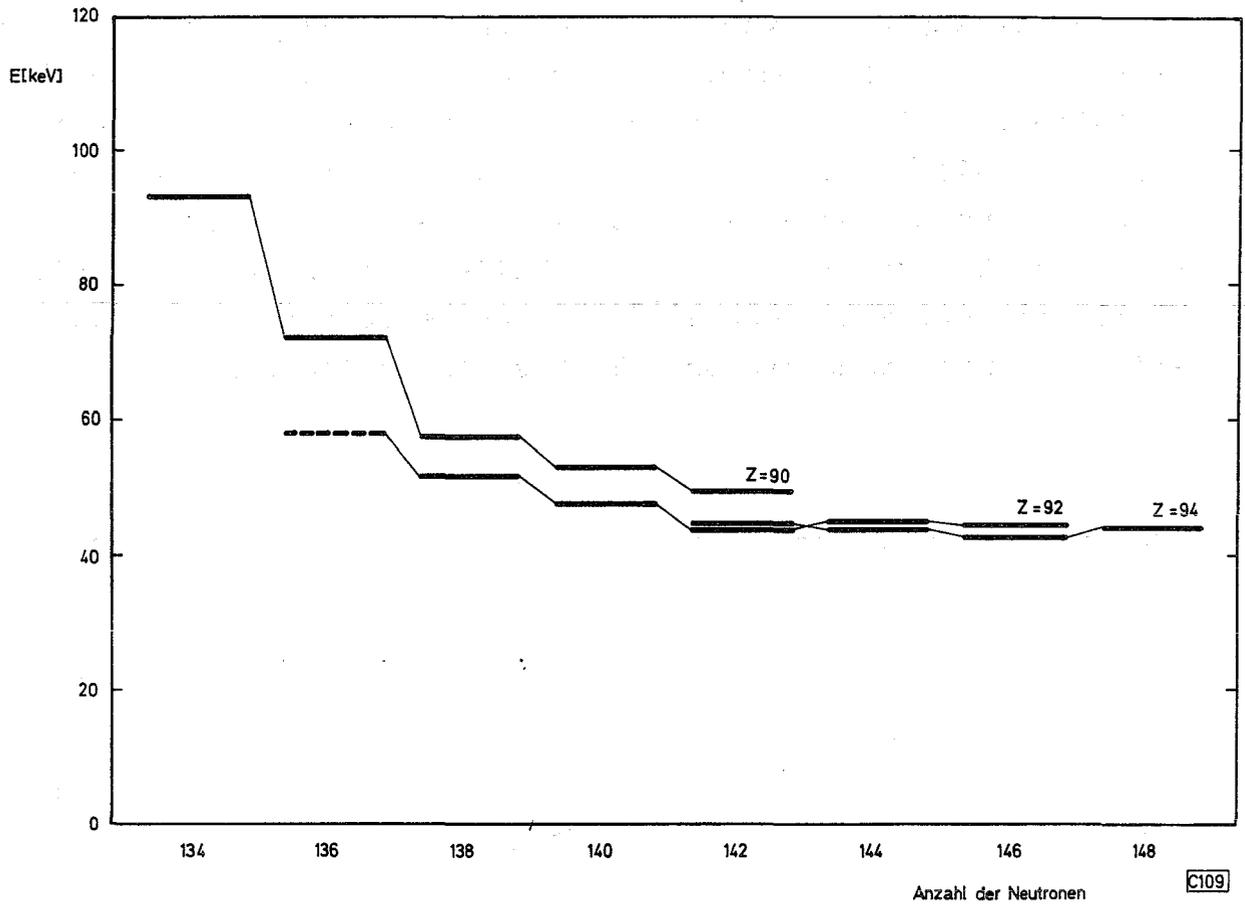


Abb. 17: Energien des ersten angeregten Zustandes ($I = 2^+$) für Thorium, Uran und Plutonium

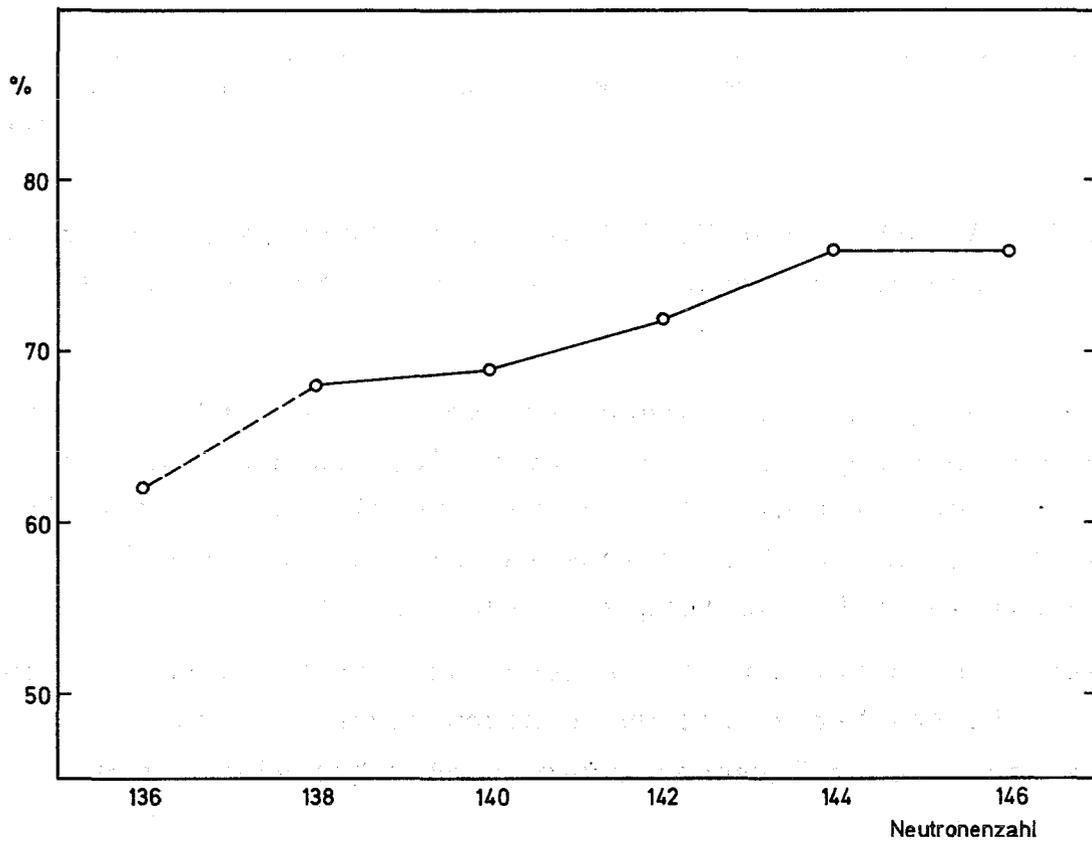
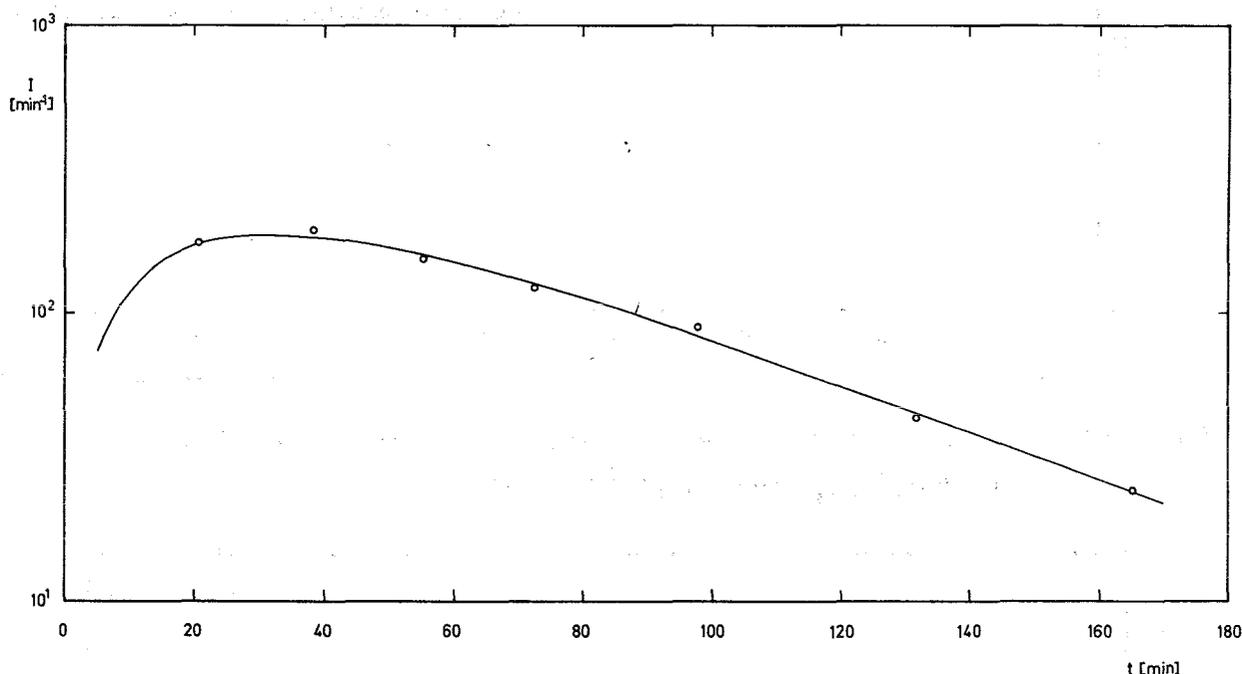


Abb. 18: Die Populierung des Grundzustandes von Uran durch den Alphazerfall in Prozent

In den Gammaskpektren wurden keine Linien gefunden, welche eindeutig dem Pu-232 zuzuordnen sind. Auch der auf das Pu-232 entfallende Anteil der Intensität in den Röntgenlinien konnte experimentell nicht direkt bestimmt werden, weil diese sehr komplex sind und außerdem eine zweite ca. 35 min Komponente - die Pu-233 Tochter Np-233 - enthalten. Ein Hinweis auf die Häufigkeit des Elektroneneinfangs konnte aber durch den Nachweis des Anwachsens des Np-232 erhalten werden (Abb. 19).



©110

Abb. 19: Anwachsen der Np-232 Aktivität durch Nachbildung aus Pu-232 (durchgezogene Linie - theoretische Kurve)

Berücksichtigt man die daraus ermittelte Intensität für den Elektroneneinfang des Pu-232, setzt diese in Beziehung zur Nachweisgrenze für Gammalinien (mit Energien über 100 keV), so ergibt sich als obere Grenze für die mögliche Häufigkeit von Gammalinien 5 % im Vergleich zum ϵ -Zerfall.

Es wurde versucht, eine Abschätzung des Verhältnisses ϵ/α zu machen. Dieses Verhältnis wurde nicht direkt gemessen. Da aber die ausgewerteten Versuche untereinander bei gleicher Bestrah-

lungenergie sich in der Intensität der Isotope um weniger als ein Faktor zwei unterscheiden, wurde eine Abschätzung durch Vergleich verschiedener Versuche gemacht.

Für das Pu-234 führt diese Abschätzung zu der Aussage, daß der α -Zerfall weniger als 10 % ausmacht bzw. $\epsilon/\alpha > 9$. Dieser Wert liefert in Bezug auf den experimentell bekannten Wert von $\epsilon/\alpha = 15,7$ eine recht brauchbare Abschätzung. Für das Pu-232 führt die gleiche Abschätzung zu der Annahme, daß der α -Zerfall weniger als 20 % ausmacht bzw. $\epsilon/\alpha > 4$.

4. Literaturverzeichnis

- (1) V.E. VIOLA, Jr. and G.T. SEABORG, J. Inorg. Nucl. Chem. 28, 741 (1966)
- (2) V.E. VIOLA, Jr. and B.D. WILKINS, Nucl Phys. 82, 65 (1965)
- (3) K.A. KELLER, KFK-1059 (1969)
- (4) D.A. ORTH, UCRL-1059 (1951)
- (5) T.D. THOMAS, R. VANDENBOSCH, R.A. GLASS und G.T. SEABORG, Phys. Rev. 106, 1228 (1957)
- (6) D.J. GORMAN und F. ASARO, Phys. Rev. C3, 746 (1971)
- (7) K.A. KELLER, KFK-1393 (1971)
- (8) K.A. KELLER, Radiochimica Acta 16, 138 (1971)
- (9) NUCLEAR DATA SHEETS, Section B, Volume 4, Nr. 6 (1970)
- (10) W. SEELMANN-EGGEBERT, G. PFENNIG und H. MÜNZEL, Nuklidkarte, 3. Auflage 1968
- (11) E.K. HYDE, UCRL-9065 (1960)
- (12) F. SCHULZ, H. BELLEMANN, KFK-685 (1967)
- (13) F.M. LANZAFAME and M. BLANN, Nucl. Phys. A142, 545 (1970)
- (14) H.E. KURZ, E.W. JASPER, K. FISCHER, F. HERMES, Nucl. Phys. A168, 129 (1971)
- (15) R. GREENLEE and B.M. WINNER, CN-3676 (1946)
- (16) K.A. KRAUS, CN-3399 (1945)

- (17) F.L. MOORE and J.E. HUDGENS, Jr., Analytical Chemistry, 29, 1767 (1957)
- (18) M. HOLLSTEIN, Nucl. Instr. and Meth. 82, 249 (1970)
- (19) H. MÜNZEL, Private Mitteilung
- (20) H. FABRICIUS, Private Mitteilung
- (21) H. RÖHM, Private Mitteilung
- (22) H. MÜNZEL, Private Mitteilung
- (23) H. MÜNZEL und G. PFENNIG, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Externer Bericht 10/67-5
- (24) H. MÜNZEL und G. PFENNIG, Kernforschungszentrum Karlsruhe, in Vorbereitung
- (25) C.M. LEDERER, J.M. HOLLANDER and I. PERLMAN, Table of Isotopes, Wiley and Sons, New York (1967)
- (26) H. BRYSK and M.E. ROSE, ORNL-1830 (1955)
- (27) I. AHMAD, UCRL-16888 (1966)
- (28) C.M. LEDERER, J.K. POGGENBURG, F. ASARO, J.O. RASMUSSEN and I. PERLMAN, Nucl. Phys. 84, 481 (1966)
- (29) J.K. LUM, J.H. LIGHT and F. ASARO, UCRL-9679 (1961)
- (30) E.K. HYDE, I. PERLMAN, G.T. SEABORG, The Nuclear Properties of the Heavy Elements I, Prentice Hall, Inc. Englewood Cliffs, New Jersey (1964)
- (31) J.C. POST, Actinides Reviews 1, 55 (1967)
- (32) C.P. RUIZ, UCRL-9511 (1961)

(33) S.G. NILSSON, UCRL-18355 (1968)

(34) D. McLAUGHLIN, Private Mitteilung (1970)