

KFK-39

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

NOVEMBER 1960

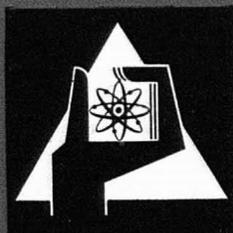
KFK 39

INSTITUT FÜR RADIOCHEMIE

DIE GEWINNUNG VON KURZLEBIGEN XENON- UND KRYPTON-SPALTISOTOPEN:
BESTIMMUNG DER γ -STRAHLUNG BEIM ZERFALL VON Xe-137 UND Kr-89

KERNREAKTOR
BAU- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.
Zentralbücherei

¹⁰⁴¹²
S. PRAKASH



KERNREAKTOR

BAU- UND BETRIEBS-GESELLSCHAFT M. B. H.

KARLSRUHE

Es wurden Uransalzlösungen²⁾ bestrahlt, aus denen die Spaltgas-Isotope mit einem Trägergas von den anderen Spaltprodukten abgetrennt werden. Eine Trennung der beiden Edelgase voneinander erfolgt durch fraktionierte Adsorption aus dem Trägergas an tiefgekühlter Aktivkohle³⁾.

Wegen der Kurzlebigkeit der Nuklide muß der gesamte Arbeitsgang in 4 Minuten beendet sein. Die abgetrennten Gasnuklide werden in eine kleine Gasmeßkammer (etwa 10–15 ml Volumen) eingebracht. Wegen des kleinen Volumens der Meßkammer müssen die Spaltedelgase weitgehend vom Trägergas befreit werden (selektive Adsorption von Xenon und Krypton aus dem Trägergas).

Experimentelles

I. Vorversuche zur Untersuchung der Xenon-Krypton-Trennung

In Vorversuchen wurden die Dimensionierung der Aktivkohleschicht (Kohlemenge, Schichtquerschnitt: Länge), die Temperaturen für die Adsorption, die Anordnung der Kohlegefäße für die verschiedenen Fraktionen festgelegt (Abb. 1).

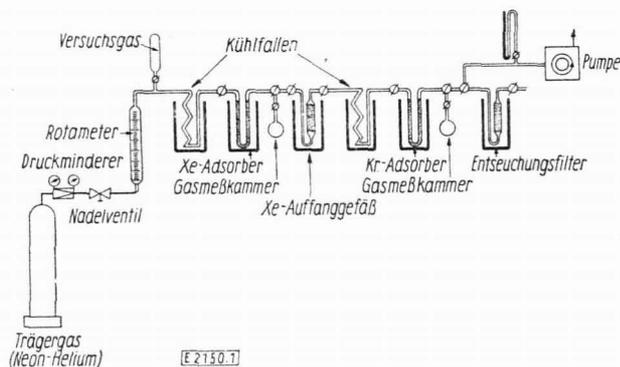


Abb. 1

Apparatur zur Trennung des Xenons von Krypton

Die Versuche ergeben, daß

1. hohe Spaltgaskonzentrationen und gute Xenon- und Krypton-Trennung aus einem Neon-Helium-Gemisch (Ne-He 75:25) als Trägergas erreicht werden. Für die Vorversuche wurden Xe-133 ($T_{1/2} = 5,65\text{d}$; $\gamma: 81\text{ KeV}$) und Kr-85 ($T_{1/2} = 10\text{a}$; $\gamma: 0,7\%$ 520 KeV) verwendet. Die Analyse der Adsorptionsfraktionen wird an Hand der γ -Spektren dieser Nuklide mit einem Szintillationsspektrometer durchgeführt;

2. für die Xe-Kr-Trennung 2 g Aktivkohle in einer zylindrischen Schicht von 240 mm Länge und 5 mm Durchmesser geeignet sind;

3. reine Meßpräparate dieser Spaltgase (Xenon bei -20°C und Krypton bei -78°C) durch vierminütiges Strömen des Trägergases mit 1,7 Liter/Minute Strömungsgeschwindigkeit erhalten werden, wenn ein 4 g-

²⁾ O. Hahn und F. Strassmann, Naturwissenschaften 27, 163 (1939).

³⁾ O. Hahn, F. Strassmann, W. Seelmann-Eggebert, Z. Naturforsch. I (10), 543 (1946).

Kohleadsorptionsgefäß bei -40°C (Xenon-Auffanggefäß) zwischen Xenon- und Krypton-Gefäß angebracht wird;

4. die bei den Versuchstemperaturen mitadsorbierten Mengen des Trägergases so klein sind, daß das aus den Adsorptionsgefäßen desorbierte Gas mit einem Luftstrom in die evakuierte Gasmeßkammer überführt werden kann.

II. Messungen der kurzlebigen Xe-137 und Kr-89-Spaltgas-Isotope

1. Bestrahlungsdurchführung

Ein etwa 8 m langes Rohr aus Reinaluminium (Abb. 2) wird entsprechend den Verhältnissen am Münchner Reaktor etwa 2 m über dem Kern in den Reaktortank eingebracht. Für die Neutronenbestrahlung kann das Rohr entlang einer Führung senkrecht in eine vorher festgelegte Stellung am Kern innerhalb kurzer Zeit (etwa 1/2 min) heruntergelassen werden bis es auf der Gitterplatte des Reaktorkerns aufliegt. In das Bestrahlungsrohr ist ein zweiteiliges Quarzrohr eingelassen, dessen unterer Teil wie eine Gaswaschflasche gebaut ist und eine wäßrige Uranyl-Nitrat-Lösung (100–200 mg natürliches Uran) enthält.

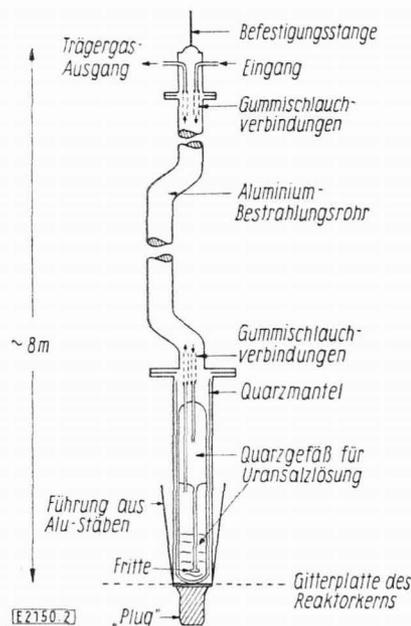


Abb. 2

Bestrahlungsrohr mit Quarzgefäß

Der obere Gefäßteil der Gaswaschflasche ist so konstruiert, daß etwa zurücksteigende Uransalzlösung darin zurückgehalten wird. Beim Einströmen des Trägergases von oben wird die Uransalzlösung wieder in den unteren Teil der Gaswaschflasche gedrückt.

Das Gaseinleitungs- sowie Austritts-Rohr des Quarzgefäßes sind durch Gummischläuche mit den beiden Anschlußstücken in der oberen Verschlussplatte des Bestrahlungsrohres verbunden und stellen die Verbindung mit der Adsorptionsapparatur her.

Wird das Bestrahlungsrohr bis auf die Gitterplatte des Reaktorkerns gesenkt, dann befindet sich die Uranlösung im Quarzgefäß auf der Höhe des maximalen Neutronenflusses (Kernmitte etwa $10^{12}\text{ n cm}^{-2}\text{ sec}^{-1}$).

Die Bestrahlung kann durch Heraufziehen des Bestrahlungsrohres schnell unterbrochen werden.

2. Gewinnung von Uranspaltgasen

Unter Berücksichtigung der Spaltausbeuten und Halbwertszeiten der Spaltedelgase ist am Ende einer vierminütigen Bestrahlung des natürlichen Urans mit Reaktorneutronen folgendes Zerfallsratenverhältnis zu erwarten:

Xe-137	50	Kr-89	50
Xe-135	0,4	Kr-88	0,9
Xe-138	10	Kr-87	2

Zur schnellen Abtrennung der kurzlebigen Edelgasisotope aus einer bestrahlten Uranlösung und zur Xenon-Krypton-Trennung wurde folgende Apparatur (Abb. 3) zusammengestellt:

Vor jeder Bestrahlung wird das gesamte System (Adsorptionsgefäße im siedenden Wasserbad) evakuiert.

Nach der Entgasung wird ein Trägergasstrom (reines Ne-He) in das System eingeleitet und die Adsorptionsgefäße in die Kühlbäder entsprechender Temperatur (s. Abb. 3) eingetaucht.

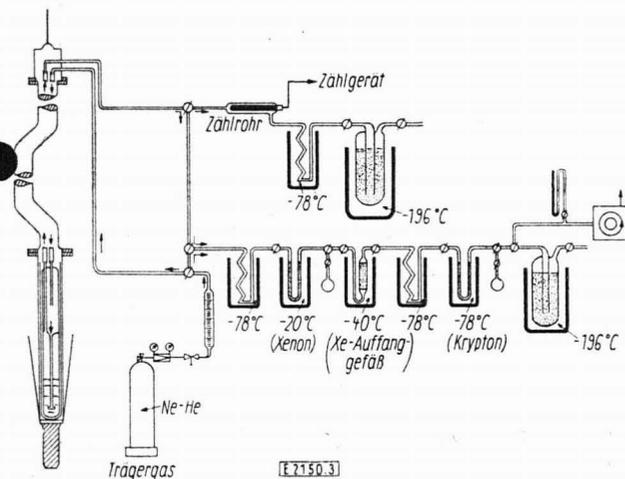
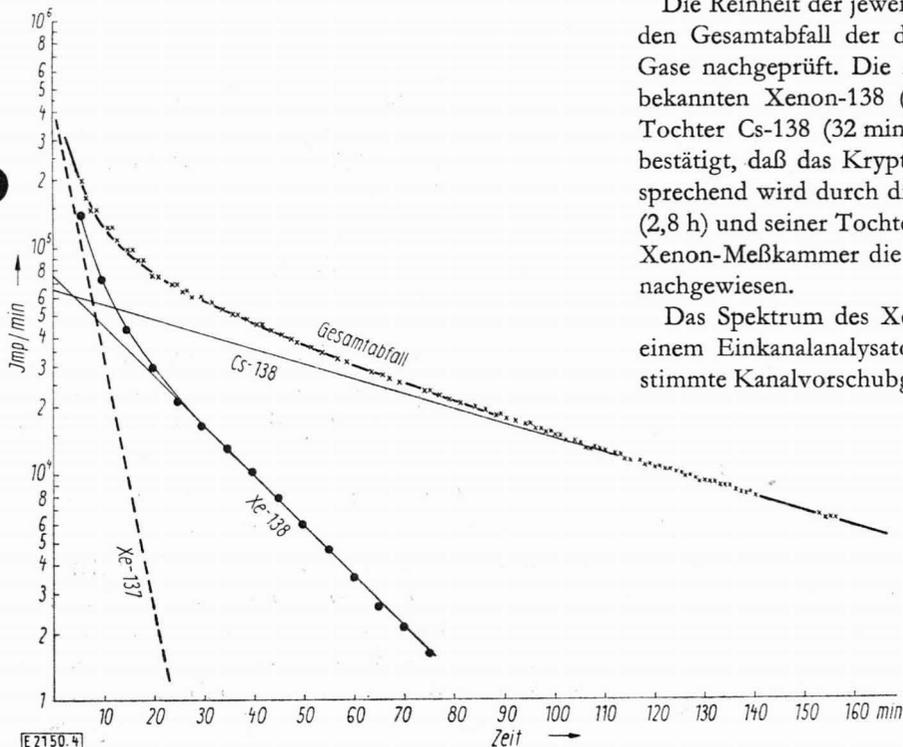


Abb. 3
Apparatur zur Erzeugung und Reindarstellung von kurzlebigen Xenon- und Krypton-Spaltgasen



E 2150.4

Etwa 10 Minuten vor Bestrahlungsbeginn wird mit dem Strömen des Trägergases durch die Uranlösung begonnen, um sie von längerlebigen Gasen (z.B. Xe-135) zu befreien. Das Spülgas wird durch ein Durchflußzählrohr in das Kohlefilter F_1 (Abb. 3) bei -196°C geleitet und die Strömung so lange fortgesetzt, bis keine Aktivität mehr festzustellen ist. Danach wird der Gasstrom abgestellt und der Gasausgang des Bestrahlungsrohres mit der Adsorptionsapparatur verbunden.

Das Bestrahlungsrohr wird nun in die Bestrahlungsposition heruntergelassen und ein Ne-He-Trägergasstrom von 1,7 NLtr/min eingeleitet. Nach 4 Minuten wird der Gasstrom unterbrochen und durch Evakuieren in der Kälte das nichtadsorbierte Trägergas aus den Adsorbentien entfernt und die Hähne geschlossen.

Die Xenon- und Kryptonadsorptionsgefäße werden von der Adsorptionsapparatur abgenommen, in ein Wasserbad (mit kochendem Wasser) gestellt und zum Meßplatz gebracht. $4\frac{1}{2}$ -5 Minuten nach Bestrahlungsende (Abklingzeit für die Spaltgase mit Halbwertszeiten kleiner als 41 s) wird der größte Teil des aus dem Adsorptionsgefäß durch Erwärmung desorbierten Gases mit nachströmender Luft in die Gasmeßkammer überführt. Sofort nach dem Einbringen der Gase in die Meßkammer wird mit der Messung begonnen.

III. Messung der Energie und Intensität der γ -Strahlen

Die γ -Linien des jeweiligen Meßpräparates werden mit einem NaJ (Tl)-Szintillationsdetektor (mit Einkanal bzw. Multikanal-Analysator) gemessen. Die β -Strahlung der Nuklide wird mit einem Al-Absorber von geeigneter Dicke absorbiert. Die Energieeichung des Spektrometers wird unter vergleichbaren Bedingungen vor und nach den Messungen mit γ -Standardpräparaten, wie Hg-203, Ce-144, Cs-137, Mn-54, Na-22 und Fe-59 vorgenommen. Eine erste Bestimmung der γ -Energie des Xe-137 und des Kr-89 wird mit einem Multikanal durchgeführt. Die höchstenergetischen γ -Linien finden sich beim Xe-137 bei 0,6 MeV und beim Kr-89 bei 2,4 MeV.

Die Reinheit der jeweiligen Meßpräparate wird durch den Gesamtabfall der darin enthaltenen längerlebigen Gase nachgeprüft. Die Abwesenheit der längerlebigen bekannten Xenon-138 (17 min)-Aktivität sowie deren Tochter Cs-138 (32 min) in der Krypton-Meßkammer bestätigt, daß das Krypton-Präparat xenonfrei ist. Entsprechend wird durch die Abwesenheit des Krypton-88 (2,8 h) und seiner Tochter Rb-88 (18 min, Abb. 4) in der Xenon-Meßkammer die Reinheit des Xenon-Präparates nachgewiesen.

Das Spektrum des Xe-137 bzw. des Kr-89 wird mit einem Einkanalanalysator aufgenommen. Für eine bestimmte Kanalvorschubgeschwindigkeit wird der Energiebereich des Spektrometers so eingestellt, daß der Kanal das Gesamtspektrum des jeweiligen Nuklids innerhalb von etwa 4 Minuten (eine Halbwertszeit der Nuklide) durchläuft. Durch die Aufnahme von aufeinander-

Abb. 4
Gesamtabfall des Xe-137-Meßpräparates

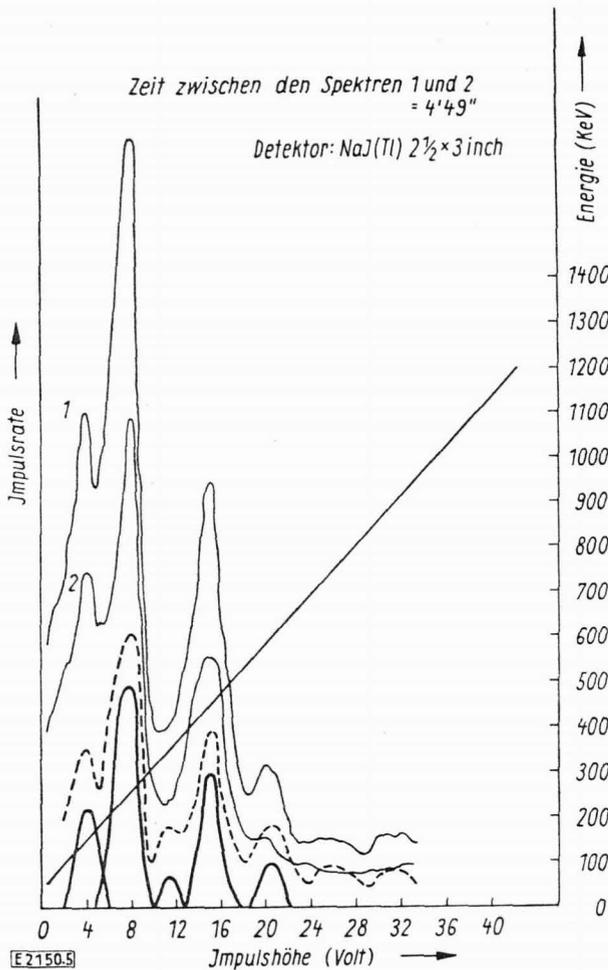


Abb. 5
γ-Spektren des Xe-137

folgenden Gesamtspektren eines Präparates in Zeitabständen von 4 Minuten kann der γ-Abfall (Abb. 5 und 6) des betreffenden Nuklids verfolgt werden.

Aus der Differenz zweier gemessener Spektren wird der Abfall im Spektrum ermittelt. Der Compton-Untergrund wird vom Differenzspektrum abgezogen⁴⁻⁶ und so werden die Fotopeaks erhalten.

Der Einkanal wird außerdem auf einzelne γ-Linien eingestellt und der Abfall verfolgt. Die Zugehörigkeit der betreffenden γ-Linien zum Nuklid kann durch die Übereinstimmung der gemessenen mit der bekannten Halbwertszeit zusätzlich bestätigt werden.

Intensität der γ-Linien

Die Flächen einzelner Fotopeaks im Differenzspektrum – wie oben erhalten – werden mit einem Planimeter ausgemessen und nach der Einbeziehung der Ansprechwahrscheinlichkeit des benutzten NaJ (Tl)-Detektors sowie des „peak to total“-Verhältnisses in

⁴) L. D. McIsaac, U.S. Naval Radiobiological Defense, Laboratory TR-72 (1956).

⁵) D. F. Covell, Analytic. Chem. 31, 1785 (1959).

⁶) D. Maeder, A. H. Wapstra et al. Physica XX 521-538 (1954).

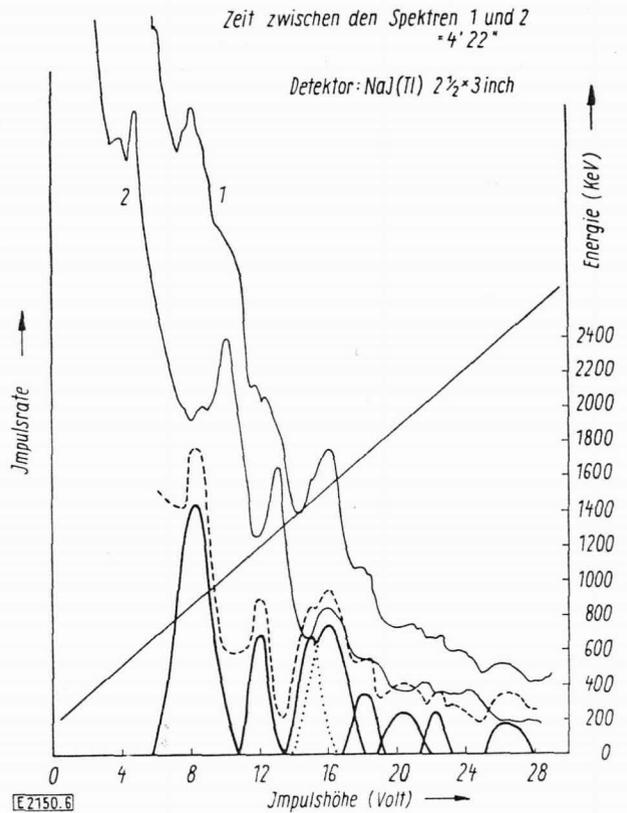


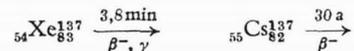
Abb. 6
γ-Spektren des Kr-89

Abhängigkeit von der Energie⁷), die relativen Intensitäten der γ-Linien bestimmt.

Meßergebnisse

Die γ-Linien und ihre relativen Intensitäten sind wie folgt:

a) Xe-137



γ-Linien	Energie MeV	Relative Intensität
γ ₁	0,6	40
γ ₂	0,46	88
γ ₃	0,35	14
γ ₄	0,24	100
γ ₅	0,15	29

Der maximale Fehler bei der Energiebestimmung beträgt ± 10%; auch die relativen Intensitäten können mit einem maximalen Fehler von ± 25% angegeben werden.

b) Kr-89

Es werden folgende γ-peaks beim Kr-89 gemessen: E_γ (MeV): 0,88; 1,17; 1,52; 1,48; 1,7; 1,9; 2,2 und 2,42.

Da die höher energetischen γ-Linien (1,9; 2,2 und 2,42 MeV) einen hohen Compton-Untergrund besitzen, können über letztere nur qualitative Angaben gemacht werden (die relativen Intensitäten der drei γ-Linien betragen jeweils ~20). Es bleiben also folgende γ-Linien

⁷) R. L. Heath, Scintillation Spectrometry γ-Ray Spectrum Catalogue IDO-16408.

Sonderdruck aus der

„Zeitschrift für Elektrochemie · Berichte der Bunsengesellschaft für physikalische Chemie“

Band 64, Heft 8/9, 1960 (Seite 1037–1041), Verlag Chemie, GmbH., Weinheim/Bergstr.

KERNREAKTOR

Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.
Zentralbücherei

Die Gewinnung von kurzlebigen Xenon- und Krypton-Spaltisotopen: Bestimmung der γ -Strahlung beim Zerfall von Xe-137 und Kr-89

Von S. PRAKASH

Aus dem Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Radiochemie

(Vorgetragen anlässlich der 59. Hauptversammlung der Deutschen Bunsen-Gesellschaft für physikalische Chemie e. V. in Bonn am 27. Mai 1960)

Die kurzlebigen Edelgasisotope Kr-89 ($T_{1/2} = 3,2$ min) und Xe-137 ($T_{1/2} = 3,8$ min) werden durch Bestrahlung von natürlichem Uran mit Reaktorneutronen erzeugt. Die beiden Gase werden aus dem gebildeten Gasgemisch durch fraktionierte Adsorption an Aktivkohle voneinander getrennt. Die getrennten Spaltedelgasisotope werden mit einem Szintillationsspektrometer untersucht. Die Energien und Intensitäten der γ -Linien geben Aufschluß über die Anregungsniveaus der Tochterkerne. Die Ergebnisse werden diskutiert.

Einleitung

Die Kerndaten der Xenon- und Krypton-Isotope mit Halbwertszeiten kleiner als 4 min, die zusammen mit einigen anderen Edelgasisotopen bei der Spaltung des U-235 mit thermischen Neutronen entstehen, sind noch

nicht vollständig untersucht worden¹⁾, da die Abtrennung und Messung dieser kurzlebigen Xenon- und Krypton-Isotope Schwierigkeiten bereiten.

¹⁾ Rev. modern Physics 30 (2), Pt II (1958).

beim Kr-89, deren Fotopeaks ausgewertet werden konnten:

γ -Linien	Energie (MeV)	Relative Intensität
γ_1	1,73	21
γ_2	1,5	100
	(1,48 u. 1,52)	
γ_3	1,17	24
γ_4	0,88	78

Diskussion

Es kann nachstehendes über die gemessenen Nuklide ausgesagt werden, wobei die Ergebnisse als vorläufig anzusehen sind:

a) Xe-137

Die nach der Absorptionmethode ermittelte β -Maximalenergie von ~ 4 MeV⁸⁾ des Xe-137 stimmt etwa mit der errechneten Massendifferenz von 4,3 MeV¹⁰⁾

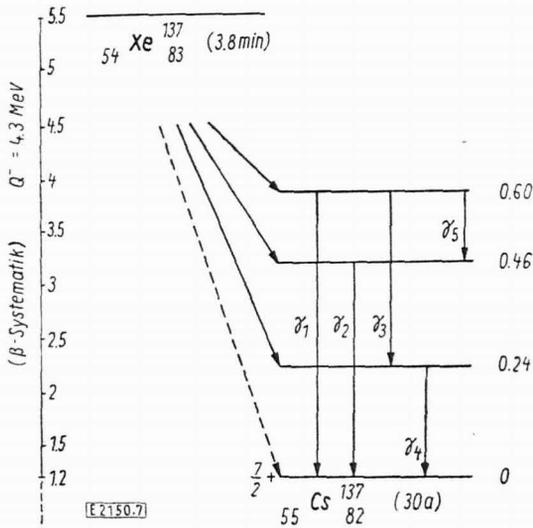


Abb. 7
Zerfallsschema von Xe-137

überein. Jedoch ist der Übergang zum Grundzustand einfach verboten¹¹⁾.

Auf Grund der gemessenen Energien und Intensitäten der γ -Linien wird folgendes Zerfallsschema (Abb. 7) vorgeschlagen:

b) Krypton-89

Die Massendifferenz (berechnet) zwischen Kr-89 und Rb-89 beträgt 5,6 MeV¹⁰⁾; die Kernsystematik läßt für Kr-89 auch eine höhere Zerfallsenergie als die vom Kr-87 (4 MeV) erwarten¹²⁾. Daher scheint die durch

⁸⁾ W. Seelmann-Eggebert und H. J. Born, Naturwissenschaften 31, 59 (1943).

⁹⁾ S. J. Nassiff und W. Seelmann-Eggebert, Z. Naturforsch. 10a, 83 (1955).

¹⁰⁾ A. H. Wapstra in Flüggé, Handbuch der Physik, Bd. 38 (Springer 1958).

¹¹⁾ M. Goepfert-Mayer in Siegbahn, β - and γ -Ray-Spectroscopy p. 441.

¹²⁾ K. Way, R. W. King, C. L. McGinnis, R. van

Absorptionsmessungen¹³⁾ ermittelte β -Maximalenergie von 4 MeV nicht von einem Übergang zum Grundzustand herzurühren. Da das Intervall zwischen der Massendifferenz und der gemessenen β -Energie etwa der γ -Linie von 1,5 MeV entspricht, wurde diese Linie als Übergang vom ersten Anregungs- zum Grundzustand eingesetzt. Auf Grund der Meßdaten wird folgendes provisorisches Zerfallsschema (Abb. 8) vorgeschlagen:

Nach den aus der Messung ermittelten relativen γ -Intensitäten ist ein β -Übergang zum ersten (1,5 MeV) Rb-89-Anregungsniveau nicht wahrscheinlich. Außerdem stimmen die sich daraus ergebenden β -Übergänge nicht mit dem bisher angegebenen Verzweigungsver-

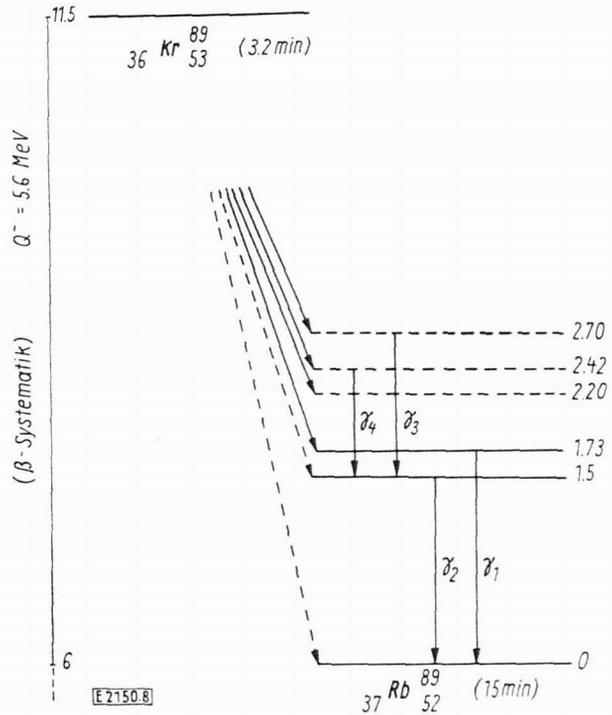


Abb. 8
Zerfallsschema von Kr-89

hältnis⁹⁾¹³⁾ von 65% 4 MeV und 35% 2 MeV β -Gruppen überein.

Herrn Prof. Dr. W. Seelmann-Eggebert, Leiter des Instituts für Radiochemie, Karlsruhe, danke ich herzlichst für sein förderndes Interesse und seine zahlreichen Anregungen.

Meinen besonderen Dank spreche ich Fr. Fillmich für ihre wertvolle Mitarbeit bei der Durchführung der vorliegenden Arbeit aus.

An dieser Stelle sei Herrn Prof. Dr. H. Maier-Leibnitz, TH München, für die Erlaubnis zur Durchführung dieser Arbeit an der Reaktorstation Garching bei München und seinen Mitarbeitern vom Reaktorbetrieb für tätige Hilfe und freundliches Entgegenkommen während der Arbeiten herzlichst gedankt. Ferner danke ich den Herren Dipl.-Chem. H. Stärk, Dr. P. Kienle und Dr. F. Baumgärtner, TH München, für die Überlassung der Meßgeräte sowie für ihre nützliche Hilfe bei der Messungsdurchführung und bei zahlreichen praktischen Fragen.

Lieshout „Nuclear Level Schemes“, A = 40 - A = 92. AEC Report: TID-5300 (1955).

¹³⁾ O. Kofoed-Hansen und K. O. Nielsen, Physic. Rev. 82, 96 (1951).