

KFK-57

# KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Mai 1961

KFK 57

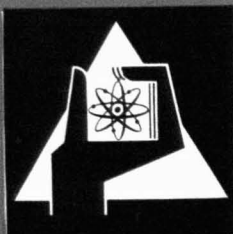
Institut für Radiochemie

Über die Bildung von  $\text{Cd}^{115\text{m}}$  bzw.  $\text{Cd}^{115\text{g}}$   
bei der Reaktion  $\text{U}(\alpha, f) \text{X}$

H. Münzel

KERNREAKTOR

Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.  
Verwaltung: Post-Zentralbucherei



KERNREAKTOR

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

KARLSRUHE

**Über die Bildung von  $\text{Cd}^{115m}$  bzw.  $\text{Cd}^{115g}$  bei der Reaktion  $U(\alpha, f)X$**

**Von H. MÜNZEL**

(Institut für Radiochemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe)

Mit 8 Textabbildungen

(Eingegangen am 8. Dezember 1960)

**KERNREAKTOR**  
Bau- und Betriebs-Gesellschaft m. b. H.  
Verwaltung der Zentralbücherei

**Zusammenfassung.** Es wurden die Fragmentausbeuten  $\sigma$  von  $\text{Cd}^{115g}$ ,  $\text{Cd}^{115m}$  und die kumulative Ausbeute von  $\text{Ag}^{115g}$  der Reaktion  $U(\alpha, f)X$  für  $\alpha$ -Energien von 25 bis 45 MeV bestimmt. Für das Verhältnis  $\sigma \text{ Cd}^{115m}/\sigma \text{ Cd}^{115g}$  ergibt sich bei einer Projektilenergie von etwa 30 MeV ein Minimum. Durch Berechnung wird gezeigt, daß dieses Minimum nicht durch den aus  $\text{Ag}^{115m}$  direkt gebildeten  $\text{Cd}^{115g}$ -Anteil, für den eine Korrektur nicht möglich war, hervorgerufen wird.

Das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte  $\sigma_m$  bzw.  $\sigma_g$  für die Bildung eines Isomerenpaares bei einer Kernreaktion hängt stark von dem Spin des Zwischenkerns ab. Ist der Spin des isomeren Zustands groß, der des Grundzustands klein (z.B.  $\text{Cd}^{115m}$ : 11/2,

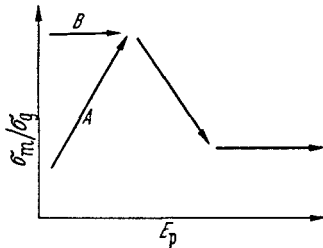


Abb. 1. Zu erwartende Abhängigkeit für das Verhältnis  $\sigma_m/\sigma_g$  von der Projektilenergie  $E_p$ . A Target-Kern mit niedrigem Spin, B Target-Kern mit hohem Spin

$\text{Cd}^{115g}$ : 1/2), so ergibt sich aus theoretischen Überlegungen, daß — je nach dem Spin des Targetkerns — das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte  $\sigma_m/\sigma_g$  in Abhängigkeit von der Projektilenergie den in Abb. 1

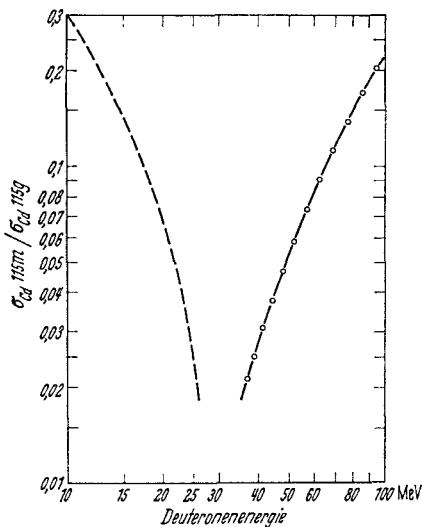


Abb. 2.  $\sigma \text{ Cd}^{115m}/\sigma \text{ Cd}^{115g}$  in Abhängigkeit von der Deuteronenergie für  $U(d, f)$ . — — — Werte von R. A. SHARP und A. C. PAPPAS; —○—○— Werte von H. G. HICKS und R. S. GILBERT

schematisch gezeigten Verlauf haben sollte. Je größer der Spin des Ausgangskerns ist, desto weniger ausgeprägt sollte das Maximum, d.h. desto flacher der anfängliche Anstieg sein. Diese Überlegungen konnten experimentell bestätigt werden (z.B. [1]).

Wendet man die theoretischen Schlußfolgerungen auf die Uranspaltung an, so sollte sich ebenfalls der in Abb. 1 gezeigte Verlauf von  $\sigma_m/\sigma_g$  ergeben. Da jedoch der die Bildungswahrscheinlichkeit bestimmende Spin

der primären Spaltprodukte hoch ist (zu mindest deuten theoretische und experimentelle Ergebnisse darauf hin), dürfte kein oder nur ein sehr schwach ausgeprägtes Maximum auftreten.  $\sigma_m/\sigma_g$  sollte mit steigender Projektilenergie zunächst stark abfallen, um sich später asymptotisch einem Grenzwert zu nähern.  $\sigma \text{ Cd}^{115m}/\sigma \text{ Cd}^{115g}$  für die Reaktion  $U(d, f) \text{ Cd}^{115m}$  bzw.  $\text{Cd}^{115g}$  durchläuft jedoch entgegen diesen Vorstellungen

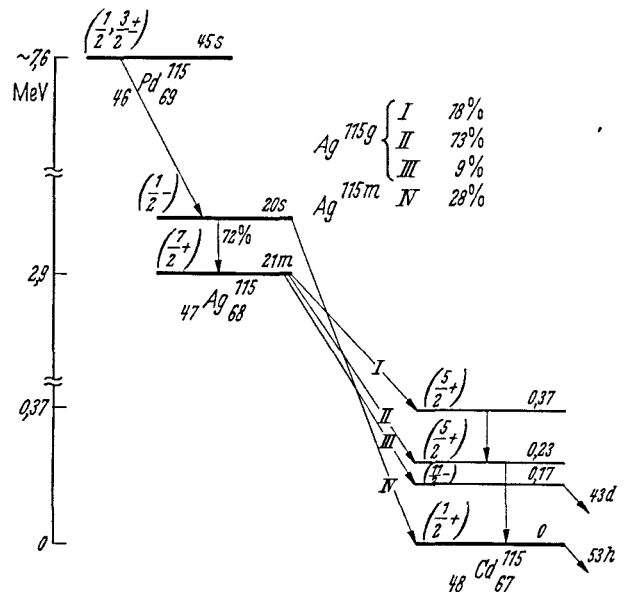


Abb. 3. Zerfallsschema der isobaren Reihe  $A = 115$  [10]

zwischen  $25 \leq E_D \leq 50$  MeV ein ausgeprägtes Minimum (Abb. 2). Die experimentellen Ergebnisse stammen von SHARP und PAPPAS [2] ( $10 \leq E_D \leq 25$  MeV) sowie von HICKS und GILBERT [3] ( $50 \leq E_D \leq 200$  MeV). Der zwischen diesen beiden Arbeiten liegende Bereich von 25 bis 50 MeV und damit die genaue Lage und Tiefe des Minimums konnte nicht bestimmt werden, da Deuteronen dieser Energie nicht zur Verfügung standen.

Zur Bestimmung der Fragmentausbeuten  $\sigma^i$  der Cd-Isomere ist es notwendig, unmittelbar nach Bestrahlungsende die beiden Isomeren gemeinsame Mutter  $\text{Ag}^{115g}$  abzutrennen (Abb. 3). In den genannten Arbeiten war die Abtrennung des Silbers spätestens 10 min nach der Bestrahlung beendet. Die erhaltenen Ergebnisse für die Cd-Isomere wurden für die bis zur Abtrennung aus der Mutter angewachsene Aktivität korrigiert. Für die aus dem kurzlebigen  $\text{Ag}^{115m}$  ( $T_{1/2}$ : 20 sec) gebildete  $\text{Cd}^{115g}$ -Aktivität ( $\text{Cd}^{115m}$  wird bei dem Zerfall von  $\text{Ag}^{115m}$  nicht direkt gebildet), konnten keine Korrekturen berechnet werden, da die Silbertrennungen dafür zu langsam waren. Die in den angeführten

Veröffentlichungen für  $\sigma$   $Cd^{115g}$  gegebenen Werte entsprechen deshalb der Summe  $\sigma^i Cd^{115g} + 0,28\sigma^c Ag^{115m}$  ( $\sigma^c$ : kumulative Isobaren-Ausbeute). Daher entspricht der in Abb. 2 gegebene Quotient nicht  $\sigma^i Cd^{115m}/\sigma^i Cd^{115g}$ , sondern  $\sigma^i Cd^{115m}/\sigma^i Cd^{115g} + 0,28\sigma^c Ag^{115m}$ .

In der vorliegenden Arbeit soll über  $\sigma^i Cd^{115m}/\sigma Cd^{115g} + 0,28\sigma^c Ag^{115m}$  für die Reaktion  $U(\alpha, f)Cd^{115m}$  bzw.  $Cd^{115g}$  im Energiebereich  $25 \leq E_\alpha \leq 45$  MeV berichtet werden.

### Versuchsbeschreibung

Dünne Uranfolien ( $\sim 37$  mg/cm<sup>2</sup>), eingespannt in einen als Faraday-Käfig ausgebildeten, wassergekühlten Targethalter, wurden für 2 bis 3 min mit insgesamt 0,15 bzw. 0,20  $\mu$ Ah  $\alpha$ -Partikeln bestrahlt. Nach dem Bestrahlungsende wurde das gebildete  $Ag^{115}$  als  $AgCl$  vom Cadmium abgetrennt. Das  $AgCl$  wurde in Gegenwart von Cd-Rückhalteträger einmal umgefällt. In dem Filtrat der ersten  $Ag$ -Fällung wurde zur Reinigung des Cadmiums eine zweite  $AgCl$ -Fällung durchgeführt. Für die gesamte Trennung des  $Ag$  vom  $Cd$  wurden 3 bis 4 min benötigt (bezogen auf Bestrahlungsende). Am nächsten Tag wurde die chemische Ausbeute der „ $Ag$ -Fraktion“ bestimmt und das aus dem  $Ag^{115}$  entstandene  $Cd^{115}$  abgetrennt. Diese  $Cd$ -Aktivität — sowie jene der „ $Cd$ -Fraktion“ — wurde nunmehr nach bekannten chemischen Methoden gereinigt [9]. Anschließend wurde das Cadmium der  $Ag$ - bzw.  $Cd$ -Fraktion als  $CdNH_4PO_4 \cdot H_2O$  gefällt und in dieser Form zur Bestimmung der chemischen Ausbeute bzw. zur Herstellung der Zählpräparate benutzt. Zur Messung der Aktivität wurden Methanzähler mit dünnem Fenster (etwa 1 mg/cm<sup>2</sup>) verwendet. Der Wirkungsgrad der Zählarrangements betrug für  $Cd^{115g}$  (+  $In^{115m}$ ) 68,5% und für  $Cd^{115m}$  49,3%. Die Selbstabsorptionskoeffizienten wurden experimentell ermittelt.

### Berechnung

Die für die  $Ag$ -Fraktion gemessene  $Cd^{115m}$ - bzw.  $Cd^{115g}$ -Aktivität —  $A(Cd^{115m})$  bzw.  $A(Cd^{115g})$  — wurde nach der Korrektur für Selbstabsorption und chemische Ausbeute ( $Ag$  und  $Cd$ ) auf die Trennzeit extrapoliert und daraus die Zerfallsrate  $Z(Ag)$  für  $Ag^{115g}$  zum Bestrahlungsende und schließlich  $\sigma Ag^{115g}$  berechnet. Da die aus  $A(Cd^{115m})$  bzw.  $A(Cd^{115g})$  berechneten Werte von  $Z(Ag)$  im Mittel auf etwa 1% übereinstimmen, ergab sich somit eine Bestätigung des Verhältnisses der benutzten Zählwirkungsgrade. Die  $Cd^{115m}$ - bzw.  $Cd^{115g}$ -Aktivität der  $Cd$ -Fraktion wurde zunächst ebenfalls für Selbstabsorption und chemische Ausbeute korrigiert, dann die dem Zuwachs aus der Mutter ( $Ag^{115g}$ ) während der Bestrahlung bzw. bis zur Abtrennung entsprechende Aktivität abgezogen und dann  $\sigma^i Cd^{115m}$  bzw.  $\sigma Cd^{115g}$  berechnet. Das Verhältnis  $\sigma^i Cd^{115m}$  zu  $\sigma Cd^{115g}$  wurde mit der von SHARP und PAPPAS [2] gegebenen Gleichung berechnet. Alle Ergebnisse wurden noch für die Aktivitätsverluste durch Rückstoß (die Reichweite der  $Cd$ -Isomere beträgt etwa 9,5 mg U/cm<sup>2</sup>) [4] und die Energieabnahme der  $\alpha$ -Teilchen beim Durchgang durch das Target korrigiert.

Die abgeschätzte Standardabweichung für die Wirkungsquerschnitte beträgt etwa  $\pm 20\%$  und für deren Verhältnis etwa  $\pm 12\%$ . Die aus Parallelversuchen errechneten Standardabweichungen betragen  $\pm 8\%$  bzw.  $\pm 5\%$ .

### Ergebnisse

In den Abb. 4 und 5 sind die Ergebnisse für  $\sigma^i Cd^{115m}$ ,  $\sigma Cd^{115g}$  und  $\sigma Ag^{115g}$  zusammengestellt. Es muß darauf hingewiesen werden, daß auch in der vorliegenden Arbeit keine Korrekturen für den Einfluß

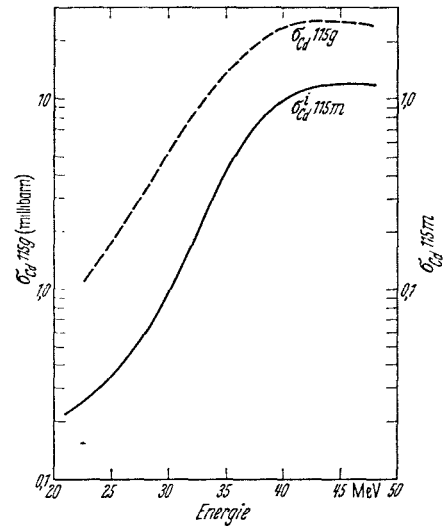


Abb. 4.  $\sigma^i Cd^{115m}$  und  $\sigma Cd^{115g}$  in Abhängigkeit von der Projektilenergie

von  $Ag^{115m}$  auf die Ergebnisse durchgeführt werden konnten.  $\sigma Cd^{115g}$  bzw.  $\sigma Ag^{115g}$  entspricht darum der Summe  $\sigma^i Cd^{115g} + 0,28\sigma^c Ag^{115m}$  bzw.  $\sigma^c Ag^{115g} + 0,72\sigma^c Ag^{115m}$ .

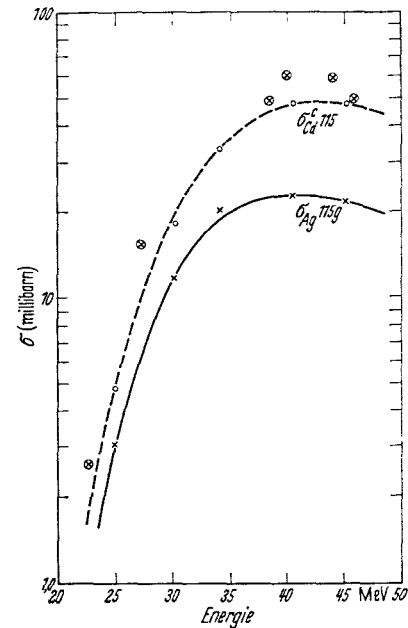


Abb. 5.  $\sigma^c Cd^{115}$  und  $\sigma Ag^{115g}$  in Abhängigkeit von der Projektilenergie.  $\otimes$  Werte von R. VANDENBOSCH [5] für  $\sigma^c Cd^{115}$

In Abb. 5 sind  $\sigma^c Cd^{115}$  und zum Vergleich die von R. VANDENBOSCH et al. [5] gemessenen Werte, welche durchweg rund 20% höher liegen, eingetragen.

In Abb. 6 ist das Verhältnis  $\sigma^i Cd^{115m}/\sigma^i Cd^{115g} + 0,28\sigma^c Ag^{115m}$  gegen die Projektilenergie aufgetragen. Es ergibt sich danach auch für die Reaktion  $U(\alpha, f)$  ein Minimum für das Verhältnis  $\sigma_m/\sigma_g$ , welches jedoch keinesfalls so stark ausgeprägt ist, wie jenes bei der Reaktion  $U(d, f)$ .

**Diskussion**

Es muß zunächst sichergestellt werden, daß das Minimum auch tatsächlich real ist. Wie bereits mehrfach erwähnt, enthält die gemessene Fragmentausbeute

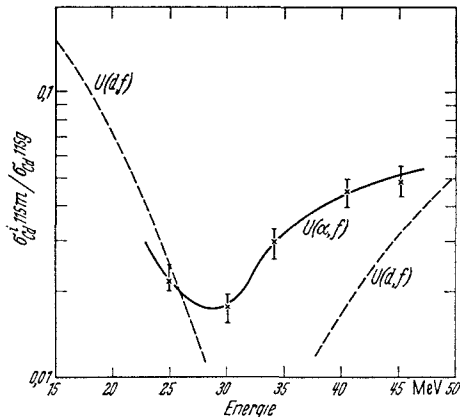


Abb. 6.  $\sigma^i Cd^{115m} / \sigma^i Cd^{115g}$  für  $U(\alpha, f)$  bzw.  $U(d, f)$  [2], [3] in Abhängigkeit von der Projektilenergie

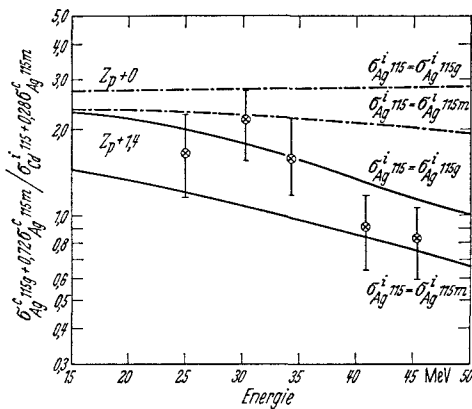


Abb. 7.  $\sigma^c Ag^{115g} + 0,72 \sigma^c Ag^{115m} / \sigma^c Ag^{115} + 0,28 \sigma^c Ag^{115m}$  in Abhängigkeit von der Projektilenergie

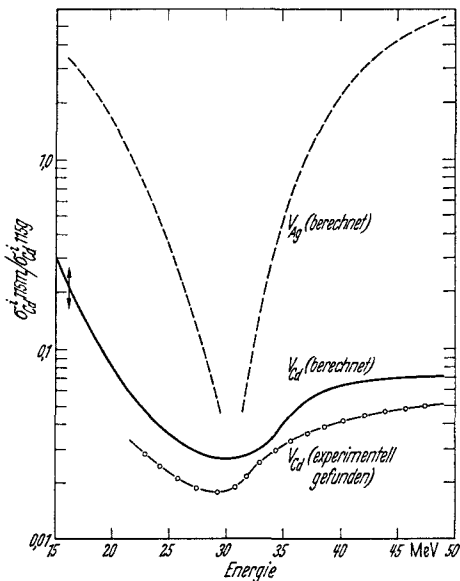


Abb. 8. Verhältnis der Wirkungsquerschnitte für die Isomeren des  $Ag^{115}$  und  $Cd^{115}$  in Abhängigkeit von der Projektilenergie

für das  $Cd^{115g}$  noch 28% der kumulativen Ausbeute von  $Ag^{115m}$ . Es ist deshalb zunächst die Frage zu beantworten, ob dieser  $Ag$ -Anteil so erheblich sein könnte, daß dadurch das Minimum im Verhältnis von  $\sigma_m / \sigma_g$  hervorgerufen wird.

Zur Berechnung der relativen Ausbeute einzelner Nuklide in einer isobaren Reihe benötigt man die „wahrscheinlichste Ladung  $Z_p$ “ der isobaren Reihe und die Häufigkeitsverteilung für die anderen Ladungen.  $Z_p$  ergibt sich aus der Regel des gleichen Ladungsabstandes [6]:

$$(Z_p - Z_A)_{\text{leichtes Fragment}} = (Z_p - Z_A)_{\text{schweres Fragment}}$$

Die stabilste Ladung  $Z_A$  der isobaren Reihe wurde der Veröffentlichung von CORYELL [7] entnommen. Weiterhin ist zu beachten, daß wahrscheinlich vor der Spaltung einige Nukleonen (vorwiegend Neutronen) entsprechend der Anregungsenergie des Zwischenkerns abgedampft werden. In der vorliegenden Arbeit wurde angenommen, daß pro 8 MeV kinetischer Energie der  $\alpha$ -Teilchen 1 Neutron zusätzlich zu den zwei Spaltneutronen aus dem Zwischenkern emittiert wird.

Die relative Häufigkeit der anderen Ladungen  $Z$  in Abhängigkeit von  $(Z_p - Z)$  wurde der Arbeit von PAPPAS [6] entnommen. Es wurde dabei, wie allgemein üblich, angenommen, daß die Häufigkeitsverteilung weder vom Zwischenkern noch von dem Massenverhältnis der primären Spaltfragmente abhängt. Es sei noch erwähnt, daß sich die Ergebnisse der nun folgenden Berechnungen nur unwesentlich ändern, wenn man die Regel des konstanten  $n/p$ -Verhältnisses [8] und die dazugehörige Häufigkeitsverteilung [8] zur Ermittlung von  $Z_p$  und der relativen Häufigkeiten von  $Ag^{115}$  bzw.  $Cd^{115}$  verwendet.

Aus der Häufigkeitsverteilung wurde der Quotient  $\sigma^c Ag^{115g} + 0,72 \sigma^c Ag^{115m} / \sigma^c Ag^{115} + 0,28 \sigma^c Ag^{115m}$  für die beiden Grenzwerte  $\sigma^c Ag^{115m} = \sigma^c Ag^{115}$  bzw.  $\sigma^c Ag^{115m} = 0$  berechnet. Wie aus Abb. 7 hervorgeht, liegen alle experimentell erhaltenen Werte für diesen Quotienten außerhalb des durch die Grenzwerte eingeschlossenen Bereichs. Es liegt nahe zu vermuten, daß diese Diskrepanz durch die Unsicherheit in der Bestimmung von  $Z_p$  — bedingt durch die Nähe der magischen Zahl  $Z = 50$  — hervorgerufen wird. Nimmt man an, daß dem berechneten  $Z_p$  zum Ausgleich nur ein konstantes, additives Glied  $K$  hinzugefügt werden muß, so ergibt sich die beste Übereinstimmung mit den experimentellen Daten für  $K = 1,4$  (s. Abb. 7).

Aus der Lage der experimentellen Punkte zu den beiden Grenzwerten wurde der Anteil von  $Ag^{115m}$  an der  $Ag^{115}$ -Gesamtausbeute berechnet. Damit ist es möglich, aus  $\sigma Cd^{115g}$  die Fragmentausbeute  $\sigma^i Cd^{115g}$  und den Quotienten  $\sigma^i Cd^{115m} / \sigma^i Cd^{115g}$  zu berechnen (s. Abb. 8). Es ergibt sich aus dieser angenäherten Berechnung, daß das Minimum real ist und dessen Entstehung ursächlich mit der Spaltung zusammenhängen sollte.

Es wäre z.B. möglich, daß im Verlauf des Spaltvorganges Zwischenkern  $\rightarrow$   $Cd$ -Spaltfragmente eine Spinselektion stattfindet. Diese Selektion müßte bewirken, daß das Verhältnis der primären Spaltfragmente mit kleinem Spin zu jenen mit hohem Spin zunächst schneller ansteigt als es der normalen Verbreiterung der Spinverteilung im Zwischenkern entspricht. Es bedarf jedoch noch weiterer experimenteller Ergebnisse, um diese Annahme zu bestätigen und um zu zeigen, daß eine solche Spinselektion auch bei der Entstehung anderer Spaltfragmente auftritt.

Herrn J. ALEXANDER möchte ich für den Hinweis auf die Arbeit von A.C. PAPPAS danken. Den Herren

Prof. G. SEABORG, Prof. E. HYDE und Prof. N. SUGARMAN fühle ich mich für die freundliche Genehmigung zur Benutzung ihrer Laboratorien sehr verpflichtet. Dem Bedienungspersonal des Zyklotrons und der Strahlenschutzabteilung des Radiation Laboratory, Berkeley, Californien, möchte ich für ihre Hilfe bei der Durchführung der Untersuchungen danken.

Die vorliegende Arbeit wurde durch ein Stipendium des Ministeriums für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft ermöglicht.

**Literatur:** [1] MEADOWS, J.W., R.M. DIAMOND and R.A. SHARP: Phys. Rev. **102**, 190 (1956). — [2] SHARP, R.A., and A.C. PAPPAS: J. Inorg. and Nucl. Chem. **10**, 173 (1959). — [3] HICKS, H.G., and R.S. GILBERT: Phys. Rev. **100**, 1286 (1956). — [4] MÜNZEL, H.: Noch nicht veröffentlichte Werte. — [5] VANDENBOSCH, R., T.D. THOMAS, S.E. VANDENBOSCH, R.A. GLASS and G.T. SEABORG: UCRL-8032 Rev. — [6] PAPPAS, A.C.: Paper P/881, Proc. Intern. Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, Geneva 1955. — [7] CORYELL, C.D.: Annual Rev. Nucl. Sci. **2**, 305 (1953). — [8] THOMAS, T.D.: UCRL-3791 (1957). — [9] MEINKE, W.W.: UCRL-432 (1949). [10] ALEXANDER, J.M., U. SCHINDEWOLF and C.D. CORYELL: Phys. Rev. **111**, 228 (1958).