

KFK-414

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

Januar 1966

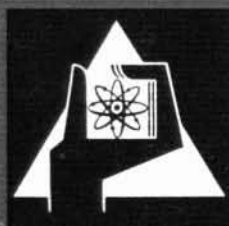
KFK 414

Institut für Radiochemie

Der Aufbau von Transuran-Elementen

C. Keller

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Zentralbücherei



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

Internationale Monatsschrift für angewandte Atomenergie in Technik, Industrie, Naturwissenschaften, Medizin einschließlich Biophysik und Strahlenschutz unter besonderer Berücksichtigung der Raumfahrtforschung und -technik

Hauptschriftleiter: Prof. Dr. rer. nat. Dr. med. E. H. Graul, 355 Marburg/Lahn, Lahnsstraße 4a

Verlag G. Braun, 75 Karlsruhe, Karl-Friedrich-Straße 14—18 · Postfach 129 · Telefon: 26951—56 · Telex: 7826 904 vgb d

Der Aufbau von Transuran-Elementen

Von C. Keller

Lehrstuhl für Radiochemie der Technischen Hochschule Karlsruhe und Institut für Radiochemie (Direktor: Prof. Dr. W. Seelmann-Eggebert), Gesellschaft für Kernforschung mbH Karlsruhe

1. Einleitung

Alle Transurane sind künstliche Elemente. Sie müssen von leichteren Elementen ausgehend durch Kernreaktionen, z. T. stufenweise aufgebaut werden. Da im Vergleich zum Alter der Erde mit $4,5 \cdot 10^9$ a selbst die längstlebigen Isotope der Transurane ${}^{244}_{94}\text{Pu}$ ($t_{1/2} = 7,6 \cdot 10^7$ a) und ${}^{247}_{96}\text{Cm}$ ($t_{1/2} = 1,6 \cdot 10^7$ a) kurze Halbwertszeiten besitzen, sind die Elemente mit $Z > 92$ in der Natur bereits ausgestorben. Das in einigen Uranerzen nachgewiesene Plutonium (Atomverhältnis ${}^{239}\text{Pu} : {}^{238}\text{U} \approx 10^{-12} : 1$) ist sekundären Ursprungs. Es bildet sich laufend durch Neutroneneinfang aus ${}^{238}_{92}\text{U}$, wobei die Neutronen sowohl von der Spontanspaltung des ${}^{238}_{92}\text{U}$ (24 Spontanspaltungen pro Stunde und gr ${}^{238}\text{U}$) als auch von (α, n) -Reaktionen mit leichten Elementen in den Uranmineralien herrühren [1].

Den ersten eindeutigen Nachweis der Bildung eines Transuranelements — des Neptuniums — erbrachten McMillan und Abelson im Jahre 1940. Bis heute wurden noch weitere elf Transuranelemente entdeckt, so daß jetzt alle Elemente bis zur Ordnungszahl 104 bekannt sind (Tabelle 1). Das Element 104 gehört als erstes nicht mehr der Actinidenreihe an, es ist ein Homologes des Hafniums (Eka-Hafnium).

Die Mehrzahl der künstlichen Elemente wurde aufgrund gezielter und zum Teil langwieriger und äußerst kostspieliger Untersuchungen erhalten. Bei den Elementen mit Ordnungszahlen oberhalb 100 betrug die Ausbeute bei der erstmaligen Identifizierung meist nur einige wenige Atome pro Versuch. Zwei der Transuranelemente, Einsteinium und Fermium, konnten zum ersten Mal völlig unerwartet in Fall-out-Proben der ersten thermonuklearen Explosion am 1. November 1952 auf dem Bikini-Atoll nachgewiesen werden.

Tabelle 1. Die Entdeckung der Transurane

Ordnungszahl	Element	Symbol	Entdecker und Entdeckungsdatum	Entdeckungsreaktion	entdecktes Isotop	längstlebige Isotop
93	Neptunium	Np	McMillan, Abelson (1940)	${}^{238}\text{U}(n, \gamma) \xrightarrow{\beta^-}$	${}^{239}\text{Np}$	${}^{237}\text{Np}$
94	Plutonium	Pu	Seaborg, McMillan, Kennedy, Wahl (1940)	${}^{238}\text{U}(d, 2n) \xrightarrow{\beta^-}$	${}^{238}\text{Pu}$	${}^{244}\text{Pu}$
95	Americium	Am	Seaborg, James, Morgan, Ghiorso (1944/45)	${}^{239}\text{Pu}(n, \gamma)(n, \gamma) \xrightarrow{\beta^-}$	${}^{241}\text{Am}$	${}^{243}\text{Am}$
96	Curium	Cm	Seaborg, James, Ghiorso (1944)	${}^{239}\text{Pu}(\alpha, n)$	${}^{242}\text{Cm}$	${}^{247}\text{Cm}$
97	Berkelium	Bk	Thompson, Ghiorso, Seaborg (1949)	${}^{241}\text{Am}(\alpha, 2n)$	${}^{243}\text{Bk}$	${}^{247}\text{Bk}$
98	Californium	Cf	Thompson, Street, Ghiorso, Seaborg (1950)	${}^{242}\text{Cm}(\alpha, n)$	${}^{245}\text{Cf}$	${}^{251}\text{Cf}$
99	Einsteinium	Es	Ghiorso, Thompson, Higgins, Seaborg, Studier, Fields, Fried, Diamond, Mech, Pyle, Huizenga, Hirsch, Mannig, Browne, Smith, Spence (1952)	Thermonukleare Explosion „Mike“	${}^{253}\text{Es}$	${}^{254}\text{Es}$
100	Fermium	Fm	Ghiorso, Harvey, Choppin, Thompson, Seaborg (1955)		${}^{255}\text{Fm}$	${}^{257}\text{Fm}$
101	Mendelevium	Md	Ghiorso, Harvey, Choppin, Thompson, Seaborg (1955)	${}^{253}\text{Es}(\alpha, n)$	${}^{256}\text{Md}$	${}^{256}\text{Md}$
102	Nobelium (?)	No(?)	Fields, Friedman, Milsted, Atterling, Forsling, Holm, Aström (1957) oder Ghiorso, Sikkeland, Walton, Seaborg (1958)	${}^{244}_{96}\text{Cm} + {}^{13}_6\text{C}$ ${}^{246}_{96}\text{Cm}({}^{12}_6\text{C}, 4n)$	${}^{251}, {}^{253}102$ ${}^{254}102$	${}^{256}102$
103	Lawrencium	Lw	Ghiorso, Sikkeland, Larsh, Latimer (1959)	${}^{249-252}_{98}\text{Cf} + {}^{10,11}_5\text{B}$	${}^{257}\text{Lw}$	${}^{256}\text{Lw}$
104			Flerov, Oganessian, Lobanov, Kuznezov, Druin, Perelygin, Gavrilov, Tretjakova, Plotko (1964)	${}^{242}_{94}\text{Pu}({}^{22}_{10}\text{Ne}, 4n)$	${}^{260}104$	${}^{260}104$

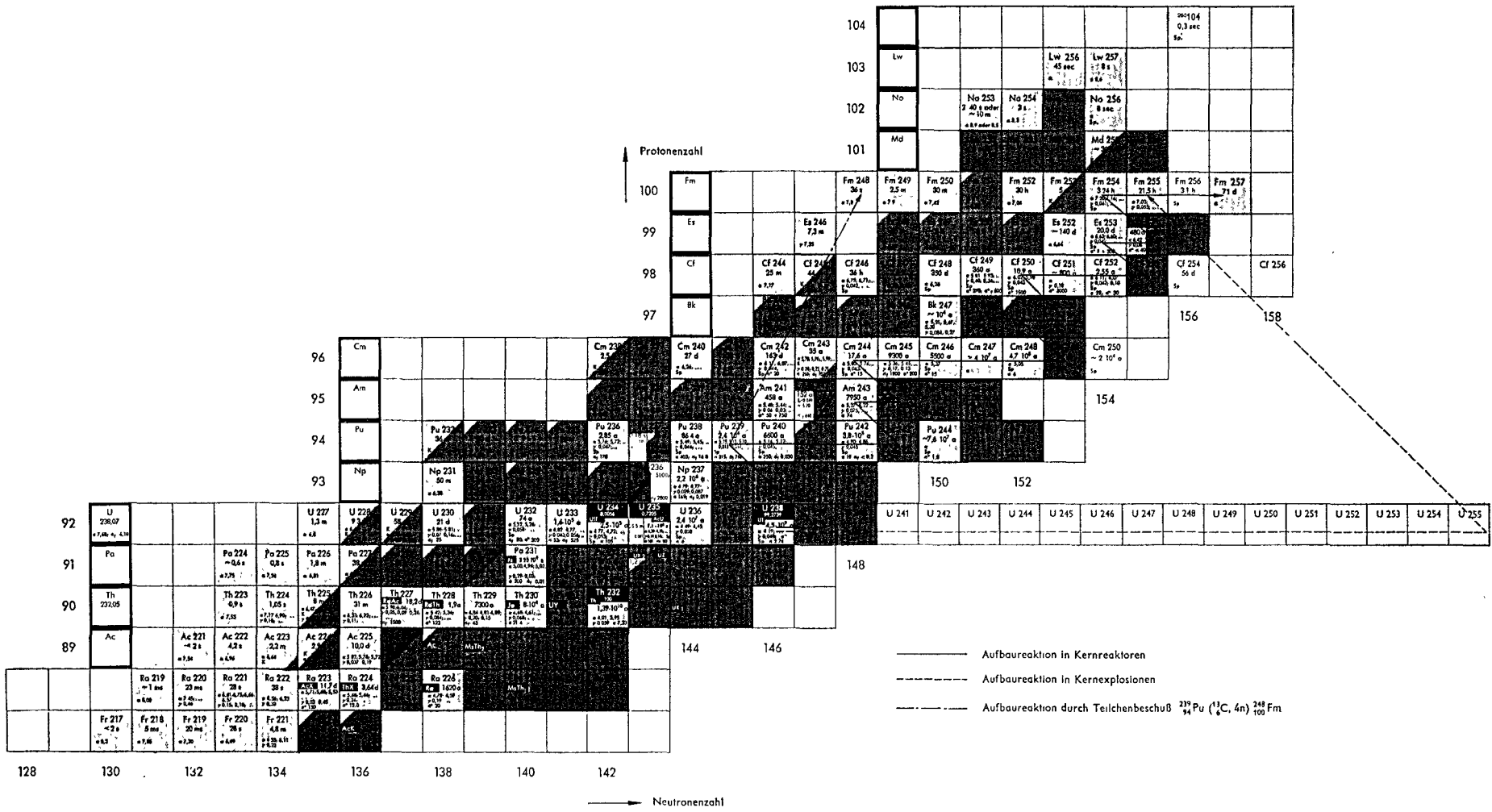


Abbildung 1. Aufbaumöglichkeiten für die schweren künstlichen Elemente (Ausschnitt aus der Nuklidkarte, herausgegeben vom Ministerium für wissenschaftliche Forschung der DDR, bearbeitet im Institut für Radiochemie der Gesellschaft für Kernforschung mbH., Karlsruhe, von Prof. Dr. W. Seelmann-Eggebert und Mitarbeitern; 2. Aufl., Gorbach & Sohn, München 1963).

Es bedeuten: gelb = α -Zerfall — blau = Negatronemission — rot = Positronenemission oder (und) K-Einfang — sp = Spontanspaltung — schwarz = natürlich vorkommende Isotope

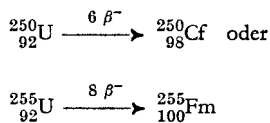
2. Aufbaureaktionen für die Transurane

Zur Synthese der schweren künstlichen Elemente bestehen folgende Möglichkeiten:

2.1. *Aufbau über Neutroneneinfangreaktionen mit anschließenden β^- -Zerfällen der gebildeten neutronenreichen Isotope.* In Abhängigkeit vom Neutronenfluß kann man drei prinzipiell verschiedene Aufbaureaktionen unterscheiden:

2.1.1. *Langsamer Aufbau, wie er in Kernreaktoren erfolgt.* Die heute maximal erreichbaren Neutronenflüsse von etwa $5 \cdot 10^{15}$ Neutronen/cm² · sec sind — für die Aufbaureaktion gesehen — relativ klein, können jedoch über lange Zeiträume aufrecht erhalten werden. Dieser Weg bietet die einzige Möglichkeit, wägbare Mengen der schweren Elemente herzustellen.

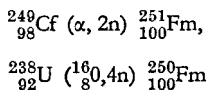
2.1.2. *Schneller Aufbau in intensiven Neutronenschauern,* wie sie z. B. in Kernexplosionen erhalten werden. Man erreicht hier Neutronenflüsse von mehr als 10^{24} Neutronen/cm² (≈ 2 Mol Neutronen/cm²), allerdings nur für eine Zeit von weniger als eine Mikrosekunde. Während eines so intensiven „Neutronenblitzes“ bilden sich z. B. aus ^{238}U durch mehrfachen Neutroneneinfang Uranisotope mit extrem hohem Neutronenüberschuß. Die Zahl der aufeinanderfolgenden Neutroneneinfänge hängt hauptsächlich von der Intensität und Dauer des Neutronenblitzes ab. Die kurzlebigen neutronenreichen Uranisotope zerfallen durch mehrfachen β^- -Zerfall in die langlebigen isobaren Kerne, z. B.



2.1.3. *Neutroneneinfang bei Flüssen von 10^{19} – 10^{21} Neutronen/cm² · sec,* wie der Kernaufbau in den Sternen über den r-Prozeß ($r = \text{rapid}$, d. h. schneller Elementaufbau) erfolgt [2]. Dieser Aufbau entspricht weitgehend dem der Reaktion 2.1.2. Es wird heute allgemein angenommen, daß die mit einer Halbwertszeit von ca. 55 d erfolgende Helligkeitsabnahme der Typ-I-Supernovae durch den Zerfall von $^{254}_{98}\text{Cf}$ bedingt ist, welches über den r-Prozeß gebildet wurde.

Auf der Erde ist dieser Prozeß heute noch nicht durchführbar, da es nicht möglich ist, derartig hohe Neutronenflüsse einige Sekunden aufrecht zu erhalten. Möglicherweise ist diese Aufbaureaktion in einigen Jahren mit gepulsten Hochflußreaktoren zu verwirklichen.

2.2. *Aufbau über Kernreaktionen, bei denen Elemente hoher Ordnungszahl mit geladenen Teilchen beschossen werden und der intermediär gebildete Zwischenkern (Compoundkern) vorzugsweise Neutronen emittiert,* z. B.



Es ist leicht verständlich, daß man über derartige Kernreaktionen, die allein mit Beschleunigern durchgeführt werden können, nur unwägbar Mengen an Atomen erhalten kann. Erwähnenswert in diesem Zusammenhang ist jedoch, daß die erste wägbare Menge eines Transuranelements ($0,5 \mu\text{gr}$ $^{239}_{94}\text{Pu}$) im Jahre 1941 durch zweitägigen Beschuß von $1,2 \text{ kg}$ Uran, die sich in einem Paraffinblock befanden, mit Neutronen erhalten wurde, welche ihrerseits über die ${}^9_4\text{Be} (d, n) {}^{10}_5\text{B}$ -Reaktion mit den Deuteronen des 60-inch-Zyklotrons von Berkeley/Californien entstanden.

Abbildung 1 zeigt eine schematische Darstellung der durchführbaren Aufbaureaktionen, wobei als Beispiel stets die Bildung von Isotopen des Fermiums aufgeführt ist.

3. Der Aufbau schwerer Elemente

3. Aufbau durch multiplen Neutroneneinfang

3.1.1. *Aufbauprinzip und Ausbeuten* an schweren Elementen*

In verschiedenen Ländern und Institutionen sind Forschungsprogramme in Bearbeitung, die die Synthese von wägbaren Mengen der Transcuriumisotope durch Langzeit-Neutronenbestrahlung von $^{239}_{94}\text{Pu}$ oder $^{241}_{95}\text{Am}$ zum Ziel haben. Das wohl ausgereifteste Projekt stellt dasjenige der amerikanischen Atomenergiebehörde dar [3]. Bei diesem Aufbauprozeß sind drei Stufen zu unterscheiden [4]:

1. Überführung von $^{239}_{94}\text{Pu}$ in $^{242}_{94}\text{Pu}$, $^{243}_{95}\text{Am}$ und $^{244}_{96}\text{Cm}$;
2. Herstellung von Isotopen des Californiums durch Bestrahlung von $^{242}_{94}\text{Pu}$, $^{243}_{95}\text{Am}$ und $^{244}_{96}\text{Cm}$;
3. Aufbau von Isotopen des Einsteiniums und Fermiums durch Bestrahlung von Californium.

Das $^{239}_{94}\text{Pu}$ wird als Pu-Al-Legierung in Chargen von 10 kg im großen Savannah River „Production-Reactor“ bei einem Fluß von ca. $3 \cdot 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ so lange bestrahlt, bis die Plutoniumfraktion zu mehr als $99,9\%$ aus $^{242}_{94}\text{Pu}$ besteht. Nach einer Bestrahlungszeit von 18 Monaten erhält man aus 10 kg $^{239}_{94}\text{Pu}$ etwa 600 gr $^{242}_{94}\text{Pu}$, 300 gr $^{243}_{95}\text{Am}$ + $^{244}_{96}\text{Cm}$ sowie $9,1 \text{ kg}$ Spaltprodukte. $^{242}_{94}\text{Pu}$, $^{243}_{95}\text{Am}$ und $^{244}_{96}\text{Cm}$ werden von den Spaltprodukten abgetrennt und in dem für die Herstellung schwerer Transurane eigens gebauten „High Flux Isotope Reactor“ (HFIR) in Oak Ridge weiter bestrahlt.

Der HFIR ist ein leichtwassermoderierter Reaktor mit $100 \text{ MW}_{\text{th}}$ Leistung und hochangereicherem Uran als Brennstoff [5]. Als Neutronenreflektor dient Beryllium. Der Brennstoff (insgesamt $9,2 \text{ kg}$ in Form von dünnen Platten) muß etwa alle 14 Tage ausgewechselt werden. Der maximale thermische Neutronenfluß beträgt $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$, bei Beladung des Reaktors mit 300 gr $^{242}_{94}\text{Pu}$ sinkt er auf 2 bis $3 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$. Wegen der großen Resonanzeinfangquerschnitte der einzelnen Transplutoniumisotope ist der HFIR für einen besonders hohen Fluß an epithermischen Neutronen ausgelegt. Der ganze Reaktor ist in einem Druckkessel (ca. $2,5 \text{ m}$ Durchmesser und 6 m Höhe) untergebracht, welcher sich seinerseits in einem Wasserbecken (Durchmesser ca. $5,5 \text{ m}$, Reaktorcore $7,5 \text{ m}$ unter der Wasseroberfläche) befindet (Abbildungen 2 und 3).

Das zu bestrahlende $^{242}_{94}\text{Pu}$ befindet sich in 31 Targetstäben [6], wobei jeder Targetstab 40 Pellets (6 mm Durchmesser und $1,3 \text{ mm}$ Höhe) eines $\text{PuO}_2/\text{Al-Cermets}$ mit 10 gr $^{242}_{94}\text{Pu}$ enthält. Wenn im Jahre 1968 genügende Mengen $^{243}_{95}\text{Am}$ + $^{244-248}_{96}\text{Cm}$ vorhanden sind, werden diese dann das $^{242}_{94}\text{Pu}$ in den Targetstäben partiell ersetzen.

Nach einer Bestrahlungszeit von knapp $1,5$ Jahren (was etwa einem Bestrahlungszyklus entspricht) bei einem Fluß von $3 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ erhält man aus 10 gr $^{242}_{94}\text{Pu}$ (einem Targetstab) nach einer 30tägigen Abkühlzeit bzw. Aufarbeitungszeit:

0,017 gr	$^{242}_{94}\text{Pu}$
0,010 gr	$^{243}_{95}\text{Am}$
1,68 gr	$^{244-248}_{96}\text{Cm}$
0,46 mg	$^{249}_{97}\text{Bk}$
5,22 mg	$^{251-254}_{98}\text{Cf}$
8,3 gr	Spaltprodukte

* Die hier angegebenen Ausbeuten beziehen sich auf das berechnete Neutronenspektrum im HFIR. Falls dieses in der Praxis ein — selbst nur geringfügig — anderes Aussehen hätte, können sich Ausbeuten und Isotopenzusammensetzung sehr stark ändern. Dies gilt besonders für Bestrahlungen in anderen Reaktoren mit unterschiedlichen Neutronenspektren.

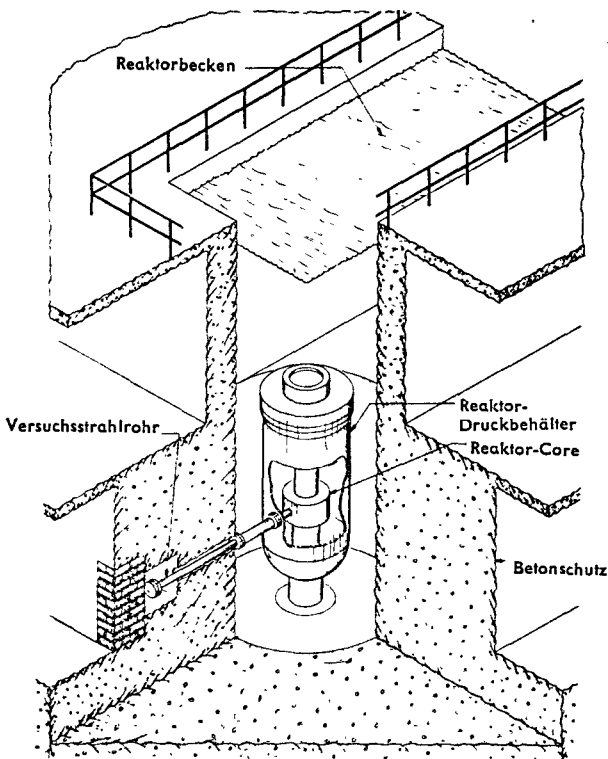


Abbildung 2. Schematische Darstellung des amerikanischen „High Flux Isotope Reactor“ (HFIR)

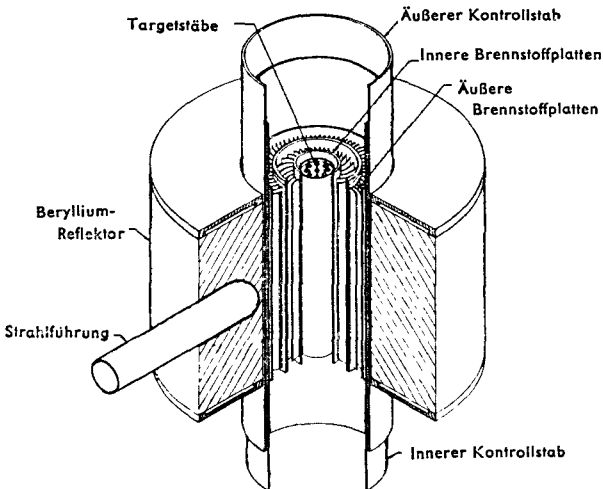


Abbildung 3. Core-Anordnung des HFIR (schematisch)

Die Curiumfraktion besteht hauptsächlich aus den Isotopen $^{244}_{96}\text{Cm}$, $^{246}_{96}\text{Cm}$, $^{248}_{96}\text{Cm}$, während die Californiumfraktion zu über 98% aus $^{252}_{98}\text{Cf}$ besteht (Abbildung 4). Bei einem Fluß von $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ beträgt die mittlere Lebensdauer eines Kerns, bezogen auf den nächsten Neutroneneinfang, bei $\sigma_c = 100 \text{ b}$ etwa 20 d [7].

Zur Herstellung von Einsteinium und Fermium wird vorher abgetrenntes Californium erneut im HFIR bestrahlt. Da die Halbwertszeiten der längstlebigen Es- und Fm-Isotope nur im Bereich von Tagen liegen, sind auch nur kürzere Bestrahlungszeiten angebracht. Eine 30tägige Bestrahlung von 1 gr $^{252}_{98}\text{Cf}$ bei dem Neutronenfluß des HFIR von $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ liefert nach

einer 2tägigen Abkühl- und Aufarbeitungszeit 60 mg $^{253}_{99}\text{Es}$, 4,1 mg $^{254}_{99}\text{Es}$, $^{255}_{99}\text{Es}$ sowie 390 μgr $^{254}_{100}\text{Fm}$ und 19 μgr $^{255}_{100}\text{Fm}$. Der schwerste, bis heute durch Neutroneneinfangreaktionen erhaltene Kern besitzt die Massenzahl 257. Nach vierjähriger Bestrahlung einer ^{242}Pu - ^{249}Am - ^{244}Cm -Probe im MTR bei einem Fluß von $3 \cdot 10^{14} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ konnte $^{257}_{100}\text{Fm}$ in nachweisbaren Mengen (ca. 0,1 α -Zerfälle/min) isoliert werden [8]. Die prinzipiellen Schwierigkeiten bei der Herstellung von Transcuriumisotopen durch Langzeitbestrahlung von $^{239}_{94}\text{Pu}$ sind:

1. Die Spaltquerschnitte σ_f von $^{245}_{96}\text{Cm}$ ($\sigma_f = 1500 \text{ b}$, $\sigma_c = 200 \text{ b}$), $^{247}_{96}\text{Cm}$ ($\sigma_f \approx \sigma_c \approx 200 \text{ b}$) sowie $^{251}_{98}\text{Cf}$ ($\sigma_f \approx \sigma_c \approx 3000 \text{ b}$) sind – im Verhältnis zu den Einfangquerschnitten σ_c – sehr hoch, so daß ein großer Teil des primär aufgebauten Materials im weiteren Verlauf der Aufbaureaktion wieder verloren geht. Bei der vollständigen Überführung von $^{239}_{94}\text{Pu}$ in $^{252}_{98}\text{Cf}$ erhält man eine Ausbeute von etwa 0,3%, die restlichen 99,7% des Ausgangsmaterials werden gespalten und sind somit für den Aufbauprozess verloren. Die bei einer kontinuierlichen Bestrahlung erzielbare tatsächliche Ausbeute an $^{252}_{98}\text{Cf}$ ist jedoch bedeutend geringer, da man infolge der Konkurrenz von Bildung und radioaktivem Zerfall nicht die Umwandlung aller Zwischenprodukte abwarten kann.

2. Nach den Gesetzen der Radioaktivität ist die Bildungsrate eines Nuklids, das durch mehrfachen Neutroneneinfang aus einem Mutternuklid gebildet wird, in erster Näherung bei konstanter Neutronendosis vom Neutronenfluß unabhängig, zumindest bei $\Phi \cdot \sigma_f \gg \ln 2/t_1$. Das bedeutet, daß, um innerhalb kurzer Zeiten von $^{244}_{96}\text{Cm}$ ausgehend durch funnfachen Neutroneneinfang zum ersten β^- -aktiven Cm-Isotop ($^{249}_{96}\text{Cm}$) und damit zum ersten Bk- und Cf-Isotop zu gelangen, Reaktoren mit hohen Neutronenflüssen notwendig sind. So bewirkt schon eine geringe Erhöhung des Neutronenflusses eines Reaktors eine bedeutende zeitliche Ausbeutesteigerung. Dies zeigt Abbildung 5 für den Aufbau von $^{252}_{98}\text{Cf}$ durch Bestrahlung von $^{242}_{94}\text{Pu}$ ($^{242}_{94}\text{Pu} \xrightarrow{10(n, \gamma); 4 \beta^-} ^{252}_{98}\text{Cf}$).

Da Reaktoren mit Neutronenflüssen von $\geq 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ bisher nicht zur Verfügung standen, existieren heute auch erst sehr geringe Mengen an längerlebigen Bk-, Cf- und Es-Isotopen. Das hat weiterhin zur Folge, daß die chemischen und physikalischen Eigenschaften der Transcuriumelemente erst sehr ungenügend bekannt sind.

Noch schwieriger ist es, Elemente jenseits des Fermiums aufzubauen. Aus der Zerfallssystematik der schweren Kerne ist abzuleiten, daß das erste β^- -aktive Fm-Isotop das $^{250}_{100}\text{Fm}$ sein wird. Von $^{254}_{100}\text{Fm}$, dem durch β^- -Zerfall eines Es-Isotops einzig in ausreichenden Mengen erhältlichen Fm-Isotop ausgehend, ist zur Bildung von $^{259}_{100}\text{Fm}$ wieder ein funnfacher Neutroneneinfang notwendig.

Im Vergleich zum analogen Aufbau des Californiums über die Curiumisotope besitzen die Fm-Isotope jedoch nur sehr kurze Halbwertszeiten, so daß ein großer Teil der intermediären Fm-Isotope zerfallen, bevor sie durch weiteren Neutroneneinfang in höhere Fm-Isotope übergehen. So beträgt z. B. für $^{255}_{100}\text{Fm}$ das Verhältnis radioaktiver Zerfall zu Neutroneneinfang selbst bei $\Phi = 5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ und $\sigma_c = 100 \text{ b}$ etwa 20, bei $^{256}_{100}\text{Fm}$ sogar 150. Es läßt sich jedoch abschätzen, daß durch Bestrahlung von $^{252}_{98}\text{Cf}$ bei Flüssen von $5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ ein Aufbau von $2 \cdot 10^7$ Atomen $^{259}_{101}\text{Md}$ (= 200 α -Zerfälle/min) bei einer 4monatigen Bestrahlung von 1 gr $^{252}_{98}\text{Cf}$ [9] sowie eventuell von Tracermengen des Elements 102 möglich ist.

3. Ein weiteres Hindernis für einen schnellen Aufbau von Transcuriumelementen bildet auch der geringe Einfangquerschnitt des $^{248}_{96}\text{Cm}$ von 2 barn.

Neben dem im Endstadium der Fertigstellung befindlichen amerikanischen HFIR existiert bisher erst ein weiterer Reaktor

[11]. — der russische Reaktor SM-2 mit 50 MW Leistung und einem thermischen Neutronenfluß von $2,5 \cdot 10^{15} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ —, der einen für die Cf-Produktion ausreichend hohen Fluß besitzt. Allerdings ist nicht bekannt, inwieweit er für derartige Projekte benutzt wird.

3.1.2. Die Abtrennung der schweren Elemente

Die Aufarbeitung des bestrahlten Plutoniums der ersten Aufbau- stufe erfolgt in den Savannah-River-Laboratorien. Die abgebrannte Pu-Al-Legierung wird in Salpetersäure gelöst und das Plutonium über ein Anionenaustauschverfahren abgetrennt und gereinigt (Abbildung 6). Americium und Curium werden anschließend zusammen mit den Selten-Erd-Spaltprodukten aus schwach saurer, $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ -haltiger Lösung spezifisch an einem Anionenaustauscher adsorbiert und mit Salpetersäure eluiert. Die weitere Reinigung sowie die gesamte Aufarbeitung der bestrahlten HFIR-Targetstäbe erfolgt in der „Transurium Processing Facility“ in Oak Ridge [12 bis 15].

Nach Überführung des salpetersauren Eluats der Lanthaniden-Actiniden-Abtrennung in eine salzsaure Lösung (Extraktion der Salpetersäure mit tertiären Aminen) können die Actiniden von den Lanthaniden durch Extraktion mit langkettigen tertiären Aminen aus 11 m LiCl-Lösung abgetrennt werden. Für eine Wiederverwendung der ^{243}Am - ^{244}Cm -Fraktion zu Bestrahlungszwecken genügen Trennfaktoren von 10^3 , das entspricht etwa einem Gehalt von 1% an Seltenen Erden.

Zur Aufarbeitung der HFIR-Targetstäbe werden die Cermetpellets aus Aluminium + Actinidenoxid in Salzsäure gelöst und die Actiniden durch Extraktion mit tertiären Aminen aus 11 m LiCl-Lösung von den Spaltprodukten getrennt. Die Gewinnung der reinen Transplutoniumelemente erfolgt in drei Schritten. In der ersten Stufe werden die Transcuriumelemente von Americium und Curium durch Extraktion mit 2-Äthylhexyl-phenyl-phosphorsäure aus 1 m HCl abgetrennt. Berkelium wird — nach Oxydation zu Bk(IV) (Tabelle 2) — mit Di-(2-Äthylhexyl)-phosphorsäure aus 10 m HNO_3 extrahiert, während die Trennung Cf-Es-Fm anschließend durch wiederholte differentielle Eluierung mit α -Hydroxybuttersäure von einer Kationenaustauschersäule erfolgt. Als Alternative zur Trennung der Actiniden von den Lanthaniden mit tertiären Aminen wird der sog. „Talspeak“-Prozeß diskutiert, bei welchem die Lanthaniden durch Extraktion mit Di-(2-Äthylhexyl)-phosphorsäure, gelöst in Diisopropylbenzol, von den Actiniden getrennt werden. Die wäßrige Phase enthält eine organische Säure (Glykolder Milchsäure) und Diäthylentriaminpentaessigsäure zur Komplexbildung [16]. Die chemischen Grundlagen dieses in halbtechnischem Maßstab ausgezeichnet funktionierenden Prozesses sind noch nicht restlos aufgeklärt.

Alle Arbeiten mit Cf-haltigen Substanzen müssen infolge der mit den niedrigen Spontanspalthalbwertzeiten von ^{252}Cf und ^{254}Cf verbundenen hohen Neutronendosis hinter einer speziellen Betonabschirmung ausgeführt werden. So emittiert z. B. ein Präparat von 300 mg Cf mit 0,52% ^{254}Cf $3 \cdot 10^{12}$ Neutronen pro Sekunde bei einer γ -Strahlendosis von 10^3 r/std in 30 cm Abstand.

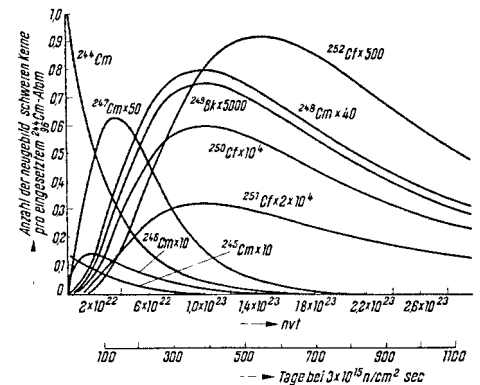


Abbildung 4. Zum Aufbau von Isotopen des Curiums, Berkeliums und Californiums durch Neutronenbestrahlung von ^{244}Cm im HFIR

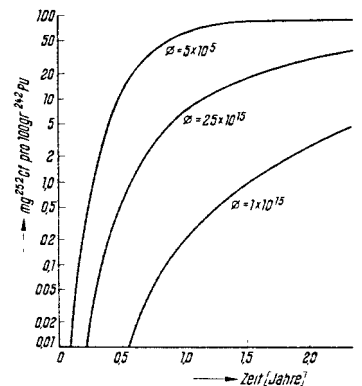


Abbildung 5. Die Bildung von ^{252}Cf aus ^{244}Pu bei verschiedenen Neutronenflüssen [10]

Tabelle 2. Wertigkeiten der Lanthaniden und Actiniden

A) Lanthaniden

Element:	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu
Ordnungszahl:	57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71

Wertigkeit:						2	2								
	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3
		4	4	4						4	4				

B) Actiniden

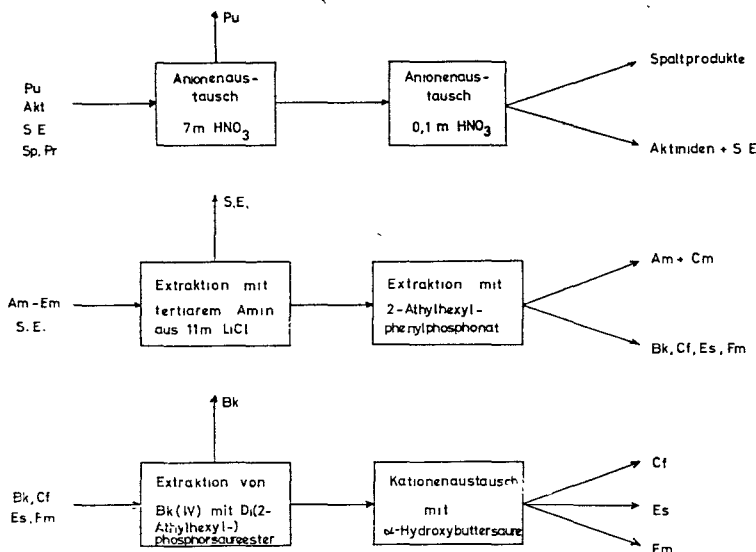
Element:	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	(No)	Lw
Ordnungszahl:	89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103

Wertigkeit:	3	(3)	(3)	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	(3)	(3)
		4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4		
			5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5		
				6	6	6	6	6	6	(6)					

Bemerkungen

halbfett gesetzte Werte: stabilste Wertigkeitsstufe in wäßriger Lösung.
Werte in Klammern: Wertigkeitsstufe noch nicht eindeutig nachgewiesen.

Abtrennung der Aktiniden-Elemente



Ein für chemisches Arbeiten in Gloveboxen gut geeignetes Californiumpräparat erhält man durch Abmelken von $^{249}_{98}\text{Cf}$ ($t_{1/2} = 360$ a) aus $^{249}_{97}\text{Bk}$ (β -Strahler, $t_{1/2} = 314$ d). Unter Verwendung von 10^{-8} bis 10^{-9} gr $^{249}_{98}\text{Cf}$ pro Experiment wurden von Cunningham in Berkeley/Calif. auch die ersten Cf-Verbindungen — Cf_2O_3 , CfCl_3 , CfOCl — dargestellt und röntgenografisch identifiziert [17]. Das Verfahren zur Darstellung dieser Verbindungen ist in Abbildung 7 aufgezeigt.

3.2 Die Synthese schwerer Elemente in Kernexplosionen

Es sind bisher sechs Kernexplosionen bekannt, bei denen die Bildung von Isotopen schwerer Elemente untersucht wurde:

a) die erste thermonukleare Explosion „Mike“ am 1. November 1952 im Bikini-Atoll mit einer Sprengkraft, die im Bereich von Megatonnen TNT lag [18] und

b) das unterirdische „Anacostia“-Experiment am 23. November 1962 in der Wüste von Nevada/USA im Rahmen des „Plowshare“-Projektes mit einer Sprengkraft von 10 kt TNT sowie die ähnlichen Experimente „Kennebec“ (Juni 1963), „Anchovy“ (November 1963) [19], „Par“ (30 kt, Oktober 1962) [20] und „Barbel“ (Herbst 1964) [20a].

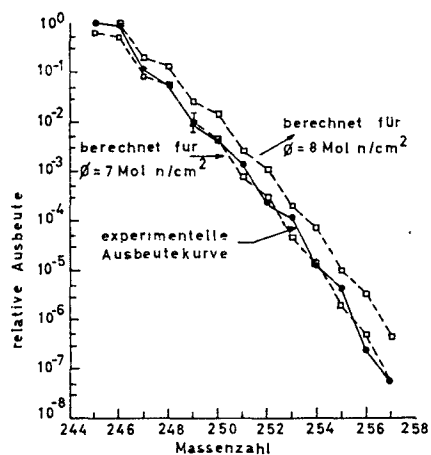


Abbildung 8. Ausbeuten an schweren Kernen beim Experiment „Par“ [23]

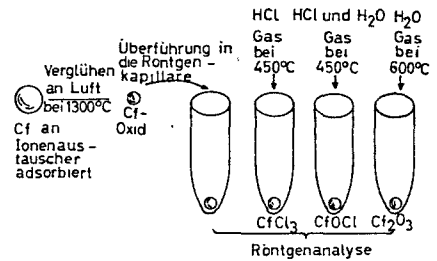


Abbildung 7. Die präparative Methode zur Darstellung der ersten Cf-Verbindungen

Abbildung 6. Aufarbeitung der bestrahlten HFIR-Brennelemente und Reinigung der schweren Transurane

Bei der Untersuchung von Fall-out-Proben des „Mike“-Experiments stellte sich heraus, daß die Plutonium-, Americium- und Curiumfraktionen einen beträchtlichen Anteil an neutronenreichen, bis dahin unbekanntem Isotopen enthielten, z. B. ^{245}Pu , ^{246}Pu und ^{248}Cm . Daher war es naheliegend zu untersuchen, ob sich bei dieser Kernexplosion nicht auch Nuklide noch höherer Kernladungszahlen gebildet hatten, und tatsächlich fand man neben Bk- und Cf-Isotopen auch Isotope der zu dieser Zeit noch unbekanntem Elemente 99 und 100 mit den Massenzahlen 253 und 255. Die Ausbeuten an schweren Kernen nehmen — von $A = 239$ ausgehend — mit steigender Massenzahl mit einem Faktor von 5,8 pro Massenzahl ab. Auffallend an der Massenausbeutekurve ist, daß die kumulativen Ausbeuten der Kerne mit gerader Massenzahl um den Faktor 1,6 höher liegen als das Mittel der kumulativen Ausbeuten der benachbarten ungeradzahigen Kerne. Dieser Unterschied wird auf verschiedene Wirkungsquerschnitte für den Neutroneneinfang zurückgeführt.

Ein ähnlicher „gerade-ungerade-Massenzahl-Effekt“ (Faktor $1,36 \pm 0,21$) ist auch den Angaben von Suess und Urey [22] über die Bildung der Kerne mit den Massenzahlen 155 bis 170 bei der Nucleogenesis zu entnehmen. Aus dieser — wenn auch etwas rohen — Übereinstimmung läßt sich der Schluß ableiten, daß zwischen dem schnellen Neutroneneinfang bei Kernexplosionen und der Nucleogenesis in den Sternen ein enger Zusammenhang bestehen dürfte.

Jedes im „Mike“-Versuch dem Neutronenfluß ausgesetzte Uranatom fing im Mittel $\varphi = 1,5$ Neutronen ein. Die Ausbeute an den Kernen N_i , die durch 1-fachen Neutroneneinfang gebildet wurde, läßt sich somit durch die Poisson-Verteilung

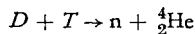
$$\frac{N_i}{N_0} = \frac{\varphi^i \cdot e^{-\varphi}}{i!}$$

angegeben, falls der Einfangquerschnitt aller dazwischen liegender Kerne als konstant angenommen wird und alle Kerne dem gleichen integralen Neutronenfluß ausgesetzt sind ($N_0 =$ Menge der Ausgangskerne). Entsprechend gilt auch

$$\frac{N_{i+1}}{N_i} = \frac{\varphi}{i+1}$$

Zwischen den auf $^{239}_{94}\text{Pu} = 1$ normierten Ausbeuten des „Mike“- und des „Anacostia“-Experimentes bestehen keine größeren Unterschiede; d. h. um durch ähnliche Versuche zu noch schwereren Nukliden zu gelangen, benötigt man keine Kernexplosionen mit extrem hoher Sprengkraft. Allerdings besitzt eine thermonukleare „Neutronenquelle“ einen entscheidenden Vorteil gegenüber einer „Spalt“-Quelle, da die Spaltprodukte in Konkurrenzreaktion zu

den schweren Kernen einen großen Teil der freiwerdenden Neutronen absorbieren und deshalb eine Flußabsenkung bewirken. Bei der thermonuklearen Reaktion, wie z. B.



bildet sich mit den Neutronen nicht gleichzeitig ein potentieller Neutronenabsorber [$\sigma_c({}^4_2\text{He}) \ll$ z. B. $\sigma_c({}^{238}_{92}\text{U})$]. Um von ${}^{238}_{92}\text{U}$ ausgehend ein ${}^{256}_{92}\text{U} : {}^{238}_{92}\text{U}$ -Verhältnis von $10^{-11} : 1$ zu erreichen, muß eine Neutronenkonzentration von etwa 1 Mol/cm^3 ca. 10^{-8} sec lang aufrecht erhalten werden [21].

Trotz der sehr verschiedenen Stärke der beiden Typen von Kernexplosionen wurde festgestellt, daß der effektive „thermische“ Neutronenfluß (10 kV) nicht sehr unterschiedlich gewesen sein dürfte (2,0 bis 4,7 Mol Neutronen/cm²). Als Maß für den Neutronenfluß bei Kernexplosionen dient das Verhältnis der gebildeten Kerne mit den Massenzahlen 246 : 245. Ein Verhältnis von z. B. 0,4 repräsentiert einen Fluß von 2,0 Mol Neutronen/cm² (Mike, Anchovy), das höhere Verhältnis 0,69 einen entsprechend höheren Fluß von 4,7 Mol Neutronen/cm² (Kennebec). Im Vergleich dazu liefert eine einjährige Bestrahlung im HFIR „nur“ 0,15 Mol Neutronen/cm².

Um zu höheren Ausbeuten an Kernen bis $A = 257$ und weiterhin zu Kernen mit Massenzahlen oberhalb 257 zu gelangen, bestehen prinzipiell drei Möglichkeiten:

- Verlängerung der Zeitdauer des Neutronenflusses,
- Erhöhung des Neutronenflusses und
- Einsatz eines Materials mit höherer Massenzahl.

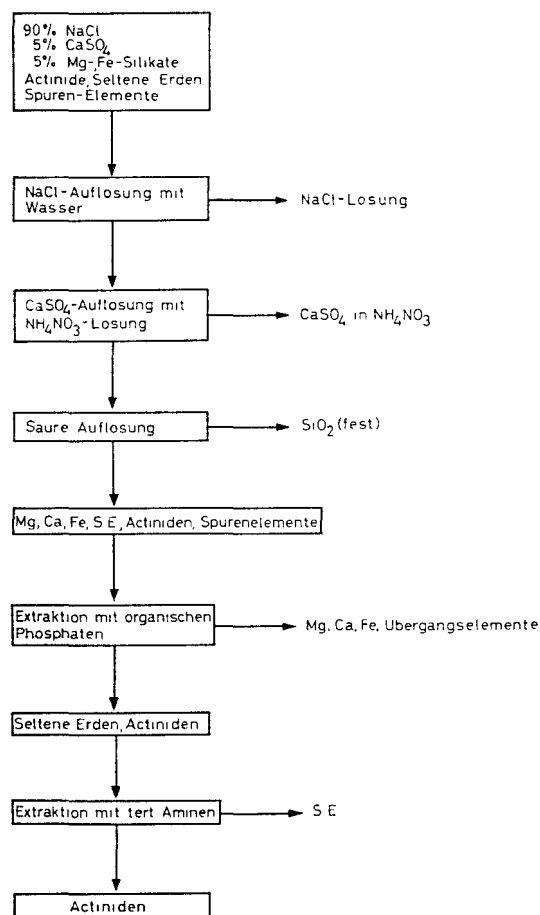


Abbildung 9. Vorgeschlagenes Verfahren zur Aufarbeitung des Umgebungsmaterials einer Kernexplosion in einer Steinsalzformation

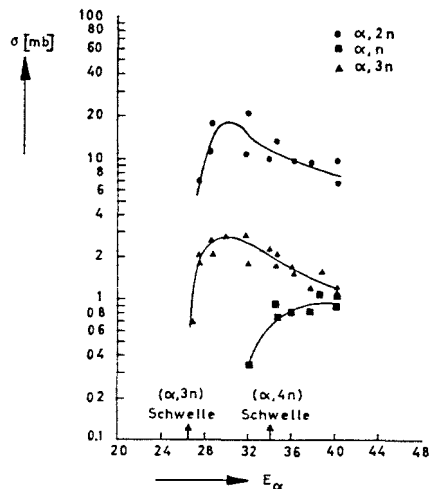


Abbildung 10. Wirkungsquerschnitte der Bildung von Isotopen des Fermiums beim Beschuß von ${}^{240}_{98}\text{Cf}$ mit α -Teilchen

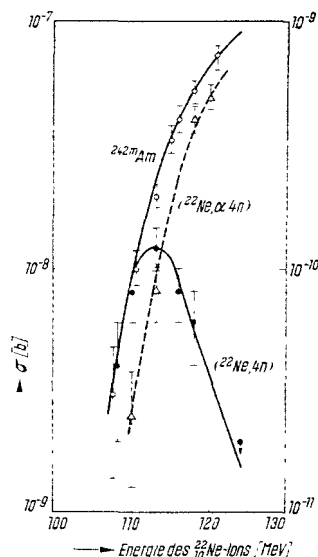


Abbildung 11. Wirkungsquerschnitte für die Bildung spontansplattendere Kerne beim Beschuß von ${}^{242}_{94}\text{Pu}$ mit ${}^{22}_{10}\text{Ne}$ -Ionen [für die Reaktionen ${}^{242}_{94}\text{Pu} ({}^{22}_{10}\text{Ne}, 4n) \rightarrow {}^{260}_{104}$ und ${}^{242}_{94}\text{Pu} ({}^{22}_{10}\text{Ne}, \alpha 4n) \rightarrow {}^{260}_{102}$ gilt rechte Ordinate, für die nicht über eine Compoundkernreaktion verlaufende Bildung des aus einem isomeren Kernzustand heraus spontansplattendere ${}^{242m}_{95}\text{Am}$ ($T_{sp} = 15 \text{ msec}$) gilt linke Skala]

Die beiden zuletzt genannten Punkte lassen sich experimentell am leichtesten verwirklichen. So erreichte man bei der Kernexplosion „Par“ (Abbildung 8) bereits 7 bis 8 Mol Neutronen/cm² und die Bildung von Kernen mit den Massenzahlen 256 (als ${}^{256}_{98}\text{Cf}$ identifiziert) und 257 (als ${}^{257}_{100}\text{Fm}$ identifiziert). Eine Verdopplung des Neutronenflusses bewirkt z. B. für Kerne mit der Massenzahl 254 eine Ausbeutesteigerung um drei bis vier Größenordnungen [9]. Gleichzeitig steigt dabei auch die Ausbeute an Kernen mit noch höheren Massenzahlen. Da die Nachweisgrenze an schweren Kernen bei Kernexplosionen — auf ${}^{239}\text{Pu}$ gleich eins bezogen — bei 10^{-12} liegt, erscheint es möglich, dann auch noch die Kerne mit den Massenzahlen bis etwa $A = 260$ bis 262 nachzuweisen und zu identifizieren. Voraussetzung dafür ist allerdings, daß ihre Halbwertszeiten nicht zu kurz sind.

Zu Punkt c gedenkt man so vorzugehen, daß man unterirdisch eine Kernexplosion hervorruft, bei der die Bombe eine „Füllung“ von $^{252}_{98}\text{Cf}$ enthält. Man vermutet, daß hierbei durch multiplen Neutroneneinfang Massenzahlen bis $A = 266$ bis 270 aufgebaut werden. Die stabilsten Isotope der Elemente 106 bis 108 dürften diese Massenzahlen besitzen, allerdings werden sie nur Halbwertzeiten von maximal einigen wenigen Sekunden aufweisen.

Möglichkeiten, diese kurzlebigen schweren Kerne zu identifizieren oder gar abzutrennen, erscheinen heute noch rein spekulativ. Es dürfte jedoch sicher feststehen, daß ein derartiges Experiment in einer Salzformation stattfinden wird, da nur dann eine schnelle Auflösung des umgebenden Materials in Wasser — für die nachfolgenden chemischen Trennschritte notwendig — erreicht werden kann. Eine von Karaker [24] vorgeschlagene Methode zur Abtrennung der längerlebigen Actinidelemente aus den Überresten einer Kernexplosion in einer Steinsalzformation zeigt Abbildung 9. Derartige Experimente werden jedoch nicht vor den Jahren 1970 bis 1972 möglich sein, da erst zu diesem Zeitpunkt eine genügend große Menge $^{252}_{98}\text{Cf}$ zur Verfügung stehen wird.

Ausgehend von $^{238}_{92}\text{U}$ können Uran-Isotope oberhalb $A = 276$ nicht mehr erhalten werden, da ab $^{277}_{92}\text{U}$ die Bindungsenergie des letzten Neutrons negativ ist [21].

3.3. Elementaufbau durch Kernreaktionen mit geladenen Teilchen

3.3.1. Allgemeine Betrachtungen

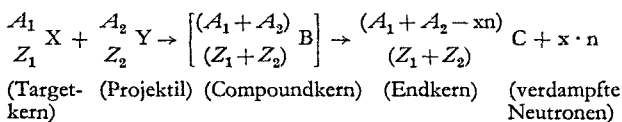
Die ersten „künstlich“ radioaktiven Substanzen (Radioisotope des Stickstoffs und Phosphors) erhielten 1933 Curie und Joliot durch Beschuß von Bor bzw. Aluminium über (α, n) -Reaktionen mit den α -Teilchen natürlich vorkommender Radionuklide. Eine Übertragung dieser Reaktionen auf schwere Elemente ist jedoch nicht möglich, da die Energie der α -Teilchen, die bei Kernzerfällen emittiert werden, unterhalb der Coulombschwelle liegt. Erst nach der Einführung des Zyklotrons und der dadurch gegebenen Möglichkeit, geladene Teilchen auf hohe Energien zu beschleunigen, konnten entsprechende Kernreaktionen auch unter Verwendung schwerer Targetelemente durchgeführt werden.

Kernreaktionen mit Targetelementen, die schwerer als Wismut sind, weisen einige Besonderheiten auf, die bei leichten Elementen nicht vorhanden sind. So sind z. B. alle Targetnuklide radioaktiv. Bei Verwendung von $^{232}_{90}\text{Th}$ oder $^{238}_{92}\text{U}$ bedingt dies keine zusätzliche Erschwerung, da diese Nuklide eine hohe Halbwertzeit und damit eine geringe spezifische Aktivität besitzen. Aber schon die Herstellung von Targets mit $^{231}_{91}\text{Pa}$, $^{239}_{94}\text{Pu}$ oder $^{241}_{95}\text{Am}$ erfordert besondere Vorsichtsmaßnahmen (Glovebox). Je kürzer die Halbwertzeiten der Ausgangsnuklide werden, desto größer wird auch die spezifische Wärmeentwicklung der Targetnuklide (ca. 150 Watt pro gr $^{210}_{84}\text{Po}$ oder 50 Watt pro gr $^{252}_{98}\text{Cf}$). Von den Elementen Francium, Radon, Astat sowie allen Elementen oberhalb $Z = 100$ existieren überhaupt keine längerlebigen Isotope, die als Ausgangsmaterial für Kernreaktionen eingesetzt werden können.

Beschießt man einen Targetkern hoher Massenzahl mit einem Projektil, dessen Energie etwa 10 bis 20 MeV oberhalb der Coulombschwelle liegt, so wird dieses mit einem Wirkungsquerschnitt von der Größe des geometrischen Kernquerschnitts eingefangen. Der entstandene Compoundkern ist hoch angeregt, seine Anregungsenergie ist etwa gleich der Hälfte der Energie des eingefangenen Projektils [25]. Der Compoundkern gibt seine Anregungsenergie durch Nukleonverdampfung ab oder spaltet. Die Wahrscheinlichkeit für die Spaltung nimmt sowohl mit der Kernladungszahl (etwa proportional Z^2/A) als auch mit der Anregungsenergie des Compoundkerns stark zu. Dies bedeutet, daß die Wirkungsquerschnitte für Kernaufbaureaktionen sehr klein sind. Sie betragen für Kernreaktionen mit leichten Geschossteilchen, wie z. B. Protonen, Deuteronen oder α -Teilchen, maximal einige Millibarn, liegen jedoch bei Verwendung von schweren Projektilen ($^{12}_6\text{C}$, $^{16}_8\text{O}$ etc.) im Mikrobarnbereich und darunter.

Beim Beschuß eines Targetnuklids mit einem geladenen Teilchen läßt sich ein neues Element aufbauen, dessen Kernladungszahl

maximal gleich der Summe der Kernladungszahlen von Targetkern und Projektil ist:



Hierbei ist vorausgesetzt, daß der intermediär gebildete Compoundkern keine geladenen Teilchen (p , α) emittiert, was bei Projektilenergien wenig oberhalb der Coulombschwelle auch zutrifft und eine rein physikalische Identifizierung der Reaktionsprodukte sehr erleichtert.

Bei dieser Art von Kernaufbaureaktion werden allerdings nur neutronenarme Isotope der schweren Elemente gebildet.

3.3.2. Kernreaktionen mit leichten Projektilen

Die Coulombschwelle für den Beschuß schwerer Targetkerne mit Protonen oder α -Teilchen liegt bei etwa 12 bzw. 25 MeV. Das bedeutet, daß der Compoundkern nur eine Anregungsenergie von einigen MeV erhält und infolgedessen das Verhältnis Neutronenemission zu Spaltung mit $1 : 10^2$ bis 10^3 relativ günstig liegt. Dies zeigt Abbildung 10 für die Bildung von $^{250-252}_{100}\text{Fm}$ durch Beschuß von $^{249}_{98}\text{Cf}$ mit beschleunigten α -Teilchen [26].

Mit steigender Projektilenergie nimmt nicht nur die Spaltwahrscheinlichkeit zu, sondern gleichzeitig auch die Zahl der aus dem Compoundkern verdampften Neutronen, so daß nur sehr neutronenarme und daher auch sehr kurzlebige Isotope der schweren Elemente gebildet werden, z. B. $^{227}_{91}\text{Pa}$ durch eine $^{232}_{90}\text{Th}(p,6n)$ -Reaktion mit einem Wirkungsquerschnitt von 1 mb bei 340 MeV Protonenenergie [27].

Da sich von den Elementen mit Kernladungszahlen oberhalb 100 keine waggbaren Mengen werden darstellen lassen, ist der Aufbau von Isotopen der Elemente mit $Z > 102$ über Kernreaktionen mit leichten Projektilen nicht möglich.

3.3.3. Kernreaktionen mit schweren Ionen

Der Vorteil beim Aufbau schwerer Elemente durch Kernreaktionen mit schweren Ionen liegt darin, daß — wenn man nur Neutronenverdampfungsreaktionen betrachtet — in einem Schritt ein Element mit einer um 6 bis 10 höheren Ordnungszahl als das Ausgangselement entsteht. Zur Überwindung des Coulombwalls muß das schwere Projektil auf eine hohe Energie beschleunigt werden, was zu einer entsprechend hohen Anregung des Compoundkerns führt. Daher ist die Spaltung die vorherrschende Zerfallsart des Compoundkerns, das Verhältnis Neutronenverdampfung zu Spaltung liegt im günstigsten Fall bei $1 : 10^3$. Das bedeutet für die Kernaufbaureaktion einen maximalen Wirkungsquerschnitt von ca. 10 μb . In der Mehrzahl der Experimente wurden jedoch bedeutend kleinere Aufbauquerschnitte beobachtet, z. B. erfolgte die Erstdarstellung des Elements 104 über die $^{242}_{94}\text{Pu}(^{22}_{10}\text{Ne}, 4n)^{260}_{104}$ -Reaktion mit einem Wirkungsquerschnitt, der nicht höher als $1,5 \cdot 10^{-4} \mu\text{b}$ war [28] (Abbildung 11). Reaktionen mit derart kleinen Wirkungsquerschnitten lassen sich nur dann feststellen, wenn ein sehr intensiver Ionenstrahl (10 bis 100 μA) zur Verfügung steht.

Beschießt man einen schweren Targetkern mit schweren Ionen, deren Energie ca. 10 bis 15 MeV oberhalb der Coulombschwelle liegt, so beobachtet man fast ausschließlich $(X, 4n)$ -Reaktionen. Die Wirkungsquerschnitte dieses Reaktionstyps besitzen stets den größten Wert, die bei höheren Energien auftretenden $(X, 5n)$ - und $(X, 6n)$ -Wirkungsquerschnitte sind geringer. Dies zeigt sehr deutlich Abbildung 12 für die Bildung von Fermiumisotopen beim Beschuß von $^{238}_{92}\text{U}$ mit beschleunigten $^{16}_8\text{O}$ -Ionen [29].

Untersucht man die Synthesemöglichkeiten schwerer Elemente, so erhebt sich die Frage, welche Ausgangsnuklid-Projektil-Kombination für einen bestimmten Endkern den größten Wirkungsquerschnitt besitzt. So bildet sich z. B. $^{250}_{100}\text{Fm}$ durch Emission von vier Neutronen aus dem Compoundkern $^{254}_{100}\text{Fm}$, der durch die Reak-

tionen $^{232}_{92}\text{Th} + ^{22}_{10}\text{Ne}$, $^{238}_{92}\text{U} + ^{16}_8\text{O}$ und $^{241}_{94}\text{Pu} + ^{13}_6\text{C}$ erzeugt werden kann. Aus den Anregungsfunktionen für diese Reaktionen (Abbildung 13) ist deutlich abzuleiten, daß die Kombination „Ausgangsnuklid hoher Kernladungszahl plus Geschößteilchen kleiner Kernladungszahl“ die höchste Ausbeute besitzt. Dies ist verständlich, da bei Kernreaktionen mit schweren Teilchen zur Überwindung des höheren Coulombwalls eine größere Projektilenergie benötigt wird, was zu einer höheren Anregungsenergie des Compoundkerns führt. Damit ist auch eine Erhöhung der Spaltwahrscheinlichkeit des Compoundkerns verbunden, da nach Vandebosch und Seaborg bei einer Zunahme der Anregungsenergie schwerer Kerne um 0,13 MeV die Spaltwahrscheinlichkeit um eine Größenordnung erhöht wird [30].

Zur Abtrennung der bei diesen Reaktionen gebildeten kurzlebigen schweren Kerne benutzt man fast ausschließlich die Rückstoßmethode, d. h. man fängt die aus dem Target herausgeschlagenen, neugebildeten, im Augenblick der Entstehung stark positiv geladenen Kerne auf einer negativ geladenen Fängerfolie auf. Die Identifizierung erfolgt nun durch chemische Aufarbeitung der Fängerfolie oder durch Registrierung der Zerfallsakte der primären Rückstoßatome entweder direkt mit Hilfe von photographischen Platten bzw. anderen geeigneten Detektoren oder häufig indirekt bei α -aktiven Substanzen, indem die hoch positiv geladenen Rückstoßatome des α -Zerfalls auf einer zweiten, starker negativ geladenen Fängerfolie gesammelt und anschließend identifiziert werden (Abbildung 14). Wegen den kurzen Halbwertzeiten der Isotope von Elementen mit Kernladungszahlen oberhalb 101 ist eine chemische Identifizierung der primären Reaktionsprodukte nicht möglich. Hier führen nur indirekte physikalische Methoden, wie Bestimmung von Ausbeuten als Funktion der Projektilenergie, Zuordnung von gefundenen α -Energien zu bestimmten Nukliden aufgrund der α -Zerfallssystematik, Vergleich von gefundenen und extrapolierten Halbwertzeiten etc. zum Ziel. Um über diese physikalische Methoden verlässliche Aussagen zu erhalten, muß man möglichst Nebenreaktionen vermeiden, d. h. man muß z. B. einen weitgehend monoenergetischen Strahl an schweren Ionen verwenden. Die Mehrzahl der Untersuchungen über die Bildung von schweren Elementen durch Kernreaktionen mit hochbeschleunigten schweren Ionen wurden entweder mit dem „Heavy Ion Linear Accelerator“ (HILAC) der Lawrence Radiation Laboratories in Berkeley/USA oder den beiden Kreisbeschleunigern in Dubna/UdSSR durchgeführt. Hier erreicht man den monoenergetischen Ionenstrom durch Verwendung spezieller Ionenquellen, die einen hoch und einheitlich ionisierten Strahl liefern. Die maximale Energie der schweren Projektile beträgt 10,3 MeV/Nukleon (HILAC) bzw. 8,5 MeV/Nukleon (310 cm Zyklotron/Dubna, Energiehalbwertbreite des 100 MeV- $^{12}_6\text{C}$ -Strahls etwa 3 MeV) [32].

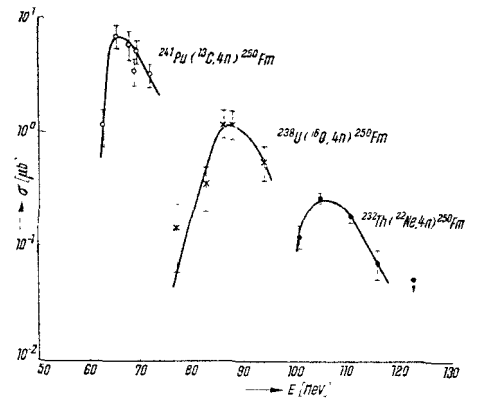


Abbildung 13. Wirkungsquerschnitte für die Bildung von $^{250}_{100}\text{Fm}$ über (X, n)-Reaktionen in Abhängigkeit von der Projektilenergie

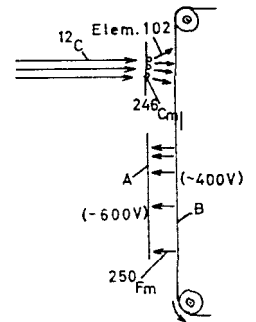


Abbildung 14. Zur Erläuterung der Rückstoßmethode. Das zur Synthese des Elements 102 von Ghiorso [31] verwendete Target bestand aus einer dünnen Nickelfolie, auf deren Rückseite das Curium abgeschieden war. Beschießt man das Target mit einem $^{12}_6\text{C}$ -Ionenstrahl, so werden die über die Reaktion $^{246}_{96}\text{Cm}(^{12}_6\text{C}, 4n)^{250}_{102}\text{Fm}$ entstandenen Atome des Elements 102 herausgeschlagen. Da diese im Augenblick der Bildung stark positiv geladen sind — die Elektronenschalen sind noch nicht vollständig aufgefüllt —, werden sie von einem negativ geladenen bewegten Metallband B angezogen, das sich hinter dem Target befindet. Wenn man die Bandgeschwindigkeit entsprechend wählt, kommen die Atome des Elements 102 in dem Augenblick unter die Auffangerfolie, in dem sie zerfallen. Etwa die Hälfte der dabei durch α -Zerfall gebildeten, im Augenblick der Entstehung positiv geladenen ^{250}Fm -Atome werden vom Band abgestoßen und auf der negativeren Auffangerfolie A niedergeschlagen. Es liegt hier also eine doppelte „Rückstoß-Trennung“ vor, die dementsprechend relativ reines ^{250}Fm liefert. Durch Vergleich von Bandgeschwindigkeit und ^{250}Fm -Aktivität der Auffangerfolie läßt sich die Halbwertzeit des ^{250}Fm zu 3 sec bestimmen

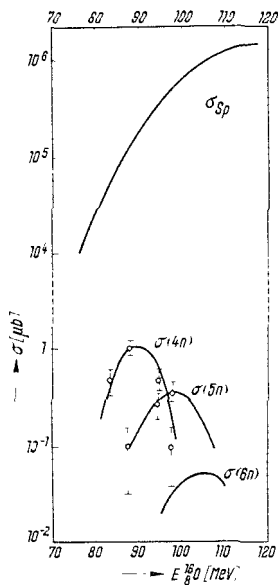
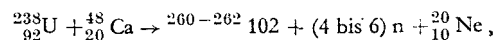


Abbildung 12. Wirkungsquerschnitte für die Bildung von Isotopen des Fermiums beim Beschuß von $^{238}_{92}\text{U}$ mit $^{16}_8\text{O}$ für die Spaltung und $(^{16}_8\text{O}, xn)$ -Reaktionen

3.3.4. Kernreaktionen mit superschweren Projektile

Zur Überwindung des Coulombwalls beim Beschuß schwerer Kerne mit superschweren Projektile (z. B. $^{24}_{12}\text{Mg}$ oder $^{48}_{20}\text{Ca}$) sind sehr hohe Energien notwendig, so daß die Spaltung des Compoundkerns der vorherrschendste Prozeß ist ($\sigma_f : \sigma_{xn} > 10^{10} : 1$). Es besteht jedoch die begründete Hoffnung, daß die Wirkungsquerschnitte für Kernreaktionen, bei denen der Targetkern nur einen Teil der Geschößteilchen einfängt — z. B. wie



mindestens 10^{-10} b betragen, so daß sich vereinzelt gebildete Kerne derartige Reaktionen auch werden nachweisen lassen. Rein formal handelt es sich hierbei um den Beschuß von $^{238}_{92}\text{U}$ mit neutronenreichen $^{28}_{10}\text{Ne}$ -Ionen. Der Vorteil dieses Reaktionstyps liegt darin, daß durch den Einfang nur eines Teils des superschweren Projektile der Compoundkern nicht übermäßig hoch angeregt wird. Über derartige Reaktionen würde man auch die wahrscheinlich längstlebigen Isotope der schweren Elemente erhalten [33].

Neben diesen „partiellen“ Kernverschmelzungsreaktionen mit nachfolgender Neutronenverdampfung sind noch Reaktionen denkbar [33], bei denen durch eine Art Wechselwirkung am Kernrand ein größerer Teil des Projektils vom Targetkern eingefangen wird, ohne daß der entstandene Kern hoch angeregt wird, z. B.

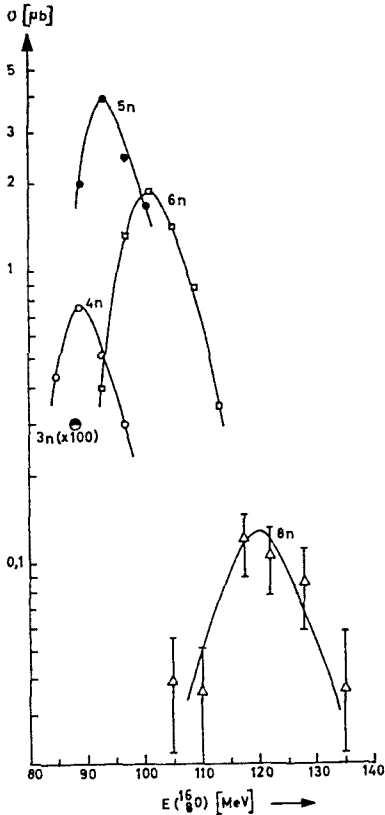
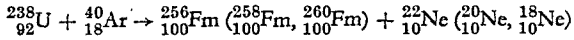


Abbildung 15. Wirkungsquerschnitte für die Bildung von Isotopen des Fermiums durch Beschuß von ${}_{92}^{238}\text{U}$ mit ${}_{8}^{18}\text{O}$ über $({}_{8}^{18}\text{O}, xn)$ -Reaktion ($4 < x < 8$)

3.4. Darstellungsmöglichkeiten der Elemente mit $Z \geq 105$

Die besten Aussichten zur Darstellung weiterer, heute noch unbekannter Elemente bieten die Kernreaktionen mit schweren Ionen, wobei als Targetnuklide die in wägbaren Substanzmengen darstellbaren Transurane verwendet werden. Zum Aufbau des Elements 105 (Eka-Tantal) sind folgende Kernreaktionen geeignet:

${}_{95}^{241,243}\text{Am} + {}_{10}^{22}\text{Ne}$, ${}_{97}^{249}\text{Bk} + {}_{8}^{16}\text{O}$, ${}_{98}^{249-252}\text{Cf} + {}_{7}^{14}\text{N}$ und ${}_{99}^{254}\text{Es} + {}_{6}^{12}\text{C}$. Da jedoch in den nächsten Jahren keine genügend großen Mengen der Transcuriumelemente zur Verfügung stehen werden, dürfte das Element 105 zuerst durch die Am + Ne-Reaktion erhalten werden. Allerdings wird der äußerst geringe Wirkungsquerschnitt dieser Reaktion mit 10^{-3} bis $10^{-4} \mu\text{b}$ eine Identifizierung vereinzelt gebildeter Kerne sehr erschweren. Die experimentelle Nachweisteknik machte jedoch in den letzten Jahren große Fortschritte, so daß es heute möglich erscheint, Produkte von Kernreaktionen nachzuweisen, die stündlich 0,3 Spontanspaltungen bzw. 50 α -Zerfälle erleiden.

Nimmt man für die Bildung des Elements 105 die Reaktion ${}_{95}^{243}\text{Am} ({}_{10}^{22}\text{Ne}, 4n) {}_{105}^{261}$ an, so entsteht ein Isotop mit einem großen Neutronenunterschub, welches eine bedeutend kürzere Halbwertszeit besitzen wird als das vermutlich stabilste Isotop mit der Massenzahl 265. Dies ist jedoch über keine der vorangehend genannten Kernreaktionen zu erhalten. Um den „Neutronenmangel“ der Endprodukte etwas zu verringern, werden häufig neutronenreiche Geschossteilchen (${}_{10}^{22}\text{Ne}$ oder ${}_{6}^{13}\text{C}$ anstelle ${}_{10}^{20}\text{Ne}$ oder ${}_{6}^{12}\text{C}$) und Targetnuklide (${}_{94}^{242}\text{Pu}$ oder ${}_{95}^{243}\text{Am}$ anstelle ${}_{94}^{239}\text{Pu}$ oder ${}_{95}^{241}\text{Am}$) eingesetzt. Allerdings besitzen dann vielfach die $(X, 4n)$ -, $(X, 5n)$ - und $(X, 6n)$ -Reaktion vergleichbare Wirkungsquerschnitte, so daß im Endeffekt der erzielbare „Neutronengewinn“ nicht sehr groß ist (Abbildung 15).

Durch analoge Kernreaktionen erscheint es durchaus hoffnungsvoll, in nicht zu ferner Zukunft Isotope der Elemente bis $Z = 109$ (Eka-Iridium) darzustellen. Die möglichen Bildungsreaktionen sind im folgenden nach abnehmenden Wirkungsquerschnitten geordnet aufgeführt ((X, xn) -Reaktionen):

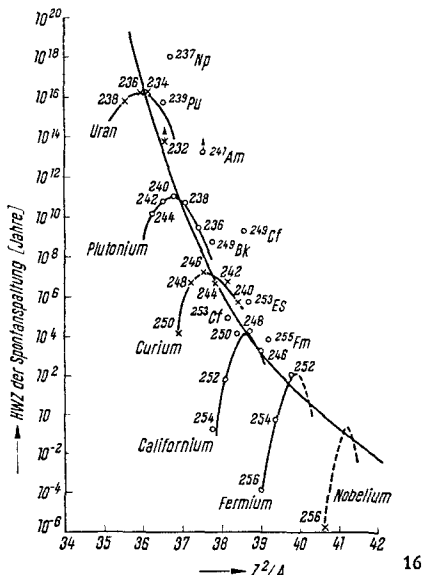
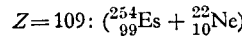
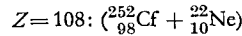
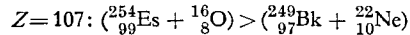
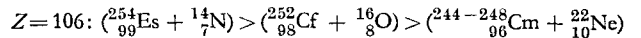


Abbildung 16. Halbwertszeiten der Spontanspaltung von Isotopen der schweren Elemente als Funktion von Z^2/A

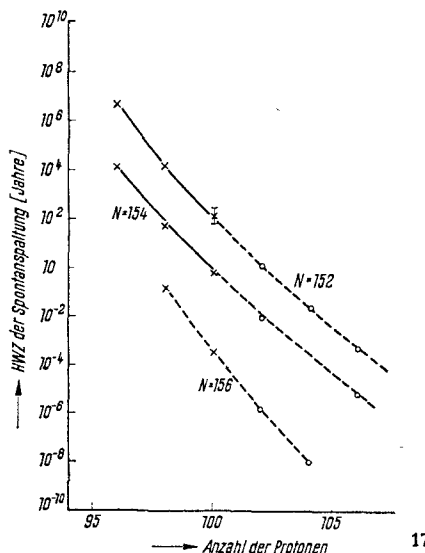
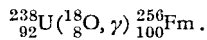


Abbildung 17. Zur Extrapolation von Spontanspalthalbwertszeiten unbekannter schwerer Kerne

Um neutronenreichere Isotope der schwersten Elemente aufzubauen als sie durch Reaktionen des Typs (X, xn) erhalten werden, werden zwei weitere Reaktionstypen diskutiert, von denen angenommen wird, daß sie zwar kleine, aber dennoch meßbare Wirkungsquerschnitte besitzen:

a) der Compoundkern gibt seine ganze Anregungsenergie durch Emission von γ -Quanten ab (radiative capture) [33] z. B.



b) Bei Kernreaktionen emittierte Partikel werden als Projektile für Sekundärreaktionen verwendet. Ein derartiger Prozeß wurde z. B. bei der Bildung von Isotopen des Astats ($Z = 85$) durch Beschuß von Blei ($Z = 82$) mit Protonen, Deuteronen und α -Teilchen nachgewiesen. In der ersten Reaktionsstufe erzeugen die leichten Projektile über einen Direktprozeß einen sekundären Teilchenstrom von neutronenreichen Lithiumionen; dieser bildet über eine Compoundkernreaktion mit dem Targetmaterial Blei Isotope des Astats [34].

4. Die Stabilität der schweren Kerne

Bei den schwersten Kernen sind der α -Zerfall und die Spontanspaltung die vorherrschendsten Zerfallsarten. Für die Isotope der Elemente mit $Z = 102$ bis 106 bestimmt bei Neutronendefizit der α -Zerfall und bei Neutronenüberschuß die Spontanspaltung die Lebensdauer eines Kernes, während bei den Elementen mit $Z > 106$ nur die Spontanspaltung ausschließlich die Stabilität aller Isotope begrenzen wird. Die Halbwertzeiten sind allgemein sehr kurz und dürften für die Elemente 106 bis 110 im Milli- bis Mikrosekundenbereich liegen. Durch Anwendung von Ruckstoßmethoden und Registrierung der Zerfälle in Photoplatten können sogar derart kurze Halbwertzeiten noch relativ genau bestimmt werden. Leider ist hierbei eine Massenzahlbestimmung nicht möglich, so daß man bei der Zuordnung der Massenzahlen weitgehend auf Analogieschlüsse angewiesen ist.

Aus dem Tröpfchenmodell des Atomkerns läßt sich ableiten, daß die Halbwertzeiten der Spontanspaltung der schwersten Kerne mit steigendem Z^2/A abnehmen. Daß diese Aussage den experimentellen Tatsachen nicht entspricht, zeigt Abbildung 16. Es ergibt sich hieraus deutlich:

1. Oberhalb $Z^2/A = 37$ sind die gefundenen Spontanspalthalbwertzeiten der stabilsten Isotope eines Elements stets größer als die berechneten Werte,
2. die Spontanspalthalbwertzeiten der Isotope eines Elements liegen auf einer parabolischen Kurve und
3. die Spontanspalthalbwertzeiten der nicht-g,g-Kerne sind bei etwa gleichem Z^2/A um den Faktor 10^3 bis 10^6 größer als die der g,g-Kerne.

Diese Abweichungen können mit dem Tröpfchenmodell nicht erklärt werden. Auch die Einführung von Korrekturtermen führte bei den meisten Nukliden noch zu keiner besseren Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment. Zur Voraussage von Spontanspalthalbwertzeiten ist man immer noch auf Extrapolationen experimenteller Werte angewiesen (Abbildung 17). Allerdings ist eine Extrapolation über einen größeren Bereich auch mit größeren Unsicherheiten verbunden.

Unter Verwendung der 1957 bekannten Daten über die Stabilität der schwersten Kerne sowie der sich aus der Greenschen Massenformel ergebenden Bindungsenergien der Nukleonen sagten Werner und Wheeler die Existenzmöglichkeit von Atomkernen bis $Z \approx 147$ und $A \approx 500$ ($Z^2/A = 43,4$) voraus, die eine Halbwertzeit von mindestens 10^{-4} sec besitzen sollten [35]. Aus den Berechnungen geht weiterhin hervor, daß auch bei Kernen mit $Z = 137$ kein Einfang von Elektronen durch den Atomkern und damit auch kein Zusammenbruch der Elektronenschalen aufgrund elektrostatischer Anziehung des positiven Kerns und der negativ geladenen Elektronenwolke erfolgt. Nach neueren Betrachtungen [36] sind jedoch „Nukleonagglomerationen“ mit $A = 300$ gegenüber einem direkten Zerfall durch Spaltung nicht mehr stabil, da schon bei diesen Massenzahlen die Oberflächenspannung des „Kerntropfens“ den abstoßenden Coulombkräften des Kerns nicht mehr standhalten kann. Es ist heute allerdings noch nicht abzusehen, ob und gegebenenfalls wie derartige schwere Kerne

aufgebaut und identifiziert werden können, so daß alle derartigen theoretischen Annahmen noch längere Zeit Hypothese bleiben werden.

Literatur

- [1] Tsaletka R. und Lapitskii A. V.: Russ. Chem. Revs. 29, 684 (1960)
- [2] Burbridge E. M., Burbridge G. R., Fowler W. A. und Hoyle F.: Revs. Modern Phys. 29, 547 (1957)
- [3] Ferguson D. F.: Nucl. Sci. Eng. 17, 435 (1963)
- [4] Burch W. D., Arnold E. D. und Chetham-Strode A.: Nucl. Sci. Eng. 17, 438 (1963)
- [5] Winters E.: Nucl. Sci. Eng. 17, 443 (1963)
- [6] Lotts A. L., Thurber W. C. und Douglas D. A. jr.: Nucl. Sci. Eng. 17, 468 (1963)
- [7] Mark J. C.: Am. Phys. Soc. Meeting, New York, Januar 1964: AED-Conf.-003-89 (1964)
- [8] Hulet E. K., Hoff R. W., Evand J. E. und Longheed R. W.: Phys. Rev. Letters 13, 343 (1964)
- [9] Milsted J., Fields P. R. und Metta D. N.: Argonne National Laboratory Report ANL-6756 (1963)
- [10] Seaborg G. T.: "Man Made Transuranium Elements", Prentice Hall Inc., N. Y. 1963
- [11] Feinberg S. M., Dollezhal N. A. und Vorobjev E. D. et al.: Proceedings of the 3rd International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf, 1964, P/320
- [12] Leuze R. E.: Nucl. Sci. Eng. 17, 448 (1963)
- [13] Loyd M. H.: Nucl. Sci. Eng. 17, 452 (1963)
- [14] Baybarz R. D., Weaver B. S. und Kinser H. B.: Nucl. Sci. Eng. 17, 457 (1963)
- [15] Baybarz R. D.: Nucl. Sci. Eng. 17, 463 (1963)
- [16] Weaver B. A. und Kappelmann F. A.: Oak Ridge National Laboratory Report ORNL-3651 (1964)
- [17] Cunningham B. B.: ref. in Seaborg G. T. "Man Made Transuranium Elements", Prentice Hall, Inc., N. Y. 1963
- [18] Diamond H., Fields P. R., Sterens C. S., Studier M. H., Fried S. M., Inghram M. G., Hess D. C., Pyle G. L., Mech J. F., Manning W. M., Ghiorso A., Thompson G. G., Higgins G. H., Seaborg G. T., Browne C. I., Smith H. L. und Spence R. W.: Phys. Rev. 119, 2000 (1960)
- [19] Dorn D. W.: Proceedings of the 3rd Plowshare Symposium, Freeborn Hall, April 1964. — Report IDO-7695 (1964)
- [20] Dorn D. W. und Hoff R. W.: Phys. Rev. Letters 14, 440 (1965)
- [20a] Los Alamos Radiochemistry Group, Phys. Rev. Letters 14, 962 (1965)
- [21] Devaney J. J., Petschek A. G. und Menzel M. T.: Los Alamos Scientific Laboratory Report LAMS-2226 (1958)
- [22] Suess H. E. und Urey H. C.: Rev. Modern Phys. 28, 53 (1956)
- [23] Dorn D. W. und Hoff R. W.: Phys. Rev. Letters 14, 440 (1965)
- [24] Karaker D. G.: Proceedings of the 3rd Plowshare Symposium, Freeborn Hall, April 1964
- [25] Hyde E. K., Perlman I. und Seaborg G. T.: "The Nuclear Properties of the Heavy Elements", Vol. I, Prentice Hall, Inc., N. Y. 1964, S. 343
- [26] Amiel S., Chetham-Strode A., Choppin G. R., Ghiorso A., Harvey B. G., Holm L. W. und Thompson S. G.: Phys. Rev. 106, 553 (1957)
- [27] Lindner M. und Osborne R. N.: Phys. Rev. 94, 1323 (1954)
- [28] Flerov G. N., Oganessyan Y. T., Lobanov Y. V., Kusnezov V. I., Druin V. A., Perelygin V. P., Gavrilov K. A., Tretjakova S. P. und Plotko V. M.: Physics Letters 13, 73 (1964)
- [29] Perelygin V. P., Donets E. D. und Flerov G. N.: Sov. Phys. JETP 10, 1106 (1960)
- [30] Vandenbosch R. und Seaborg G. T.: Phys. Rev. 110, 507 (1958)
- [31] Ghiorso A., Sikkeland T., Walton J. R. und Seaborg G. T.: Phys. Rev. Letters 1, 17 (1957)
- [32] Flerov G. N.: Proceedings 2nd International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva, 1958, 14, 151 (1958)
- [33] Flerov G. N., Donets E. D. und Druin V. A.: Atomn. Energ. (russ.) 14, 18 (1963)
- [34] Wang-Yung-Y, Kusnetzov V., Kusnetsova M. J., Mekhedov V. N. und Khalkin V.: Sov. Phys. JETP 12, 370 (1961)
- [35] Werner F. G. und Wheeler J. A.: Phys. Rev. 109, 126 (1958)
- [36] Brandt R., Werner F. G., Wakano M., Fuller R. und Wheeler J. A.: Proceedings of the International Conference on Nuclide Masses, Hamilton/Ontario, Sept. 1960

Anschrift des Verfassers: Priv.-Doz. Dr. C. Keller Lehrstuhl für Radiochemie, Technische Hochschule, 75 Karlsruhe, Gesellschaft für Kernforschung mbH, Postfach 947

Der Aufbau von Transuran-Elementen

Die experimentellen Möglichkeiten zur Herstellung der Transurane werden aufgezeigt. Daraus ist zu ersehen, daß wägbare Mengen der höheren Transurane bis Fermium nur durch Langzeitbestrahlung von Uran oder Plutonium in Hochflußreaktoren erhalten werden können. Kernreaktionen mit schweren Ionen und — in geringerem Maße Kernexplosionen — bieten die größten Aussichten, weitere Elemente und bisher unbekannte Isotope der Transcuriumelemente aufzubauen. Wegen der kleinen Wirkungsquerschnitte für Kernreaktionen mit schweren Ionen werden von den Elementen mit $Z > 100$ nur Tracermengen oder gar nur wenige Atome erhalten werden. Aufgrund der Bildungs- und Zerfallssystematik der schwersten Kerne ist zu erwarten, daß diese nur sehr kurze Halbwertszeiten haben werden, wodurch nur eine indirekte Identifizierung durch physikalische Methoden möglich sein wird.

The Composition of Transuranium-Elements

Experimental techniques are described for the build-up of transuranium elements. It can be deduced that weighable amounts of the transuranium elements up to fermium can be prepared only by long-time irradiation of uranium or plutonium in high flux reactors. Nuclear reactions with heavy ions and — to a smaller extent — nuclear explosions appear to be most promising to synthesize new transcurium elements and isotopes. Since these heavy ion nuclear reactions have extremely small cross-sections, only tracer quantities or even few atoms of the elements with $Z > 100$ will be produced. On account of the systematics of their formation and disintegration it must be expected that the heaviest nuclides have only very short half-lives. Therefore they can presumably be identified only indirectly by physical methods.

La composition des éléments transuraniens

Les possibilités expérimentales d'une génération des éléments transuraniens sont indiquées. Il en résulte que les transuraniens jusqu'au fermium ne sont obtenus en quantités pondérables que par irradiation de durée de l'uranium ou du plutonium dans les réacteurs à haut flux. Les réactions nucléaires avec des ions lourds — et dans une moindre mesure les explosions nucléaires — ont les plus grandes chances à l'égard de la formation de nouveaux éléments ou d'isotopes des éléments transcuriens. Étant donné les petites sections efficaces pour les réactions nucléaires avec des ions lourds on n'obtiendra que des traces ou plutôt peu d'atomes des éléments avec $Z > 100$. À cause du régime déterminant la formation et la désintégration des noyaux les plus lourds on s'attend très courtes périodes de demi-vie de ceux-ci; en conséquence, la méthode physique ne permettra qu'une identification indirecte.