

KERNFORSCHUNGSZENTRUM

KARLSRUHE

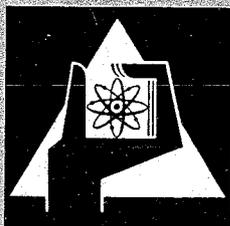
Juli 1966

KFK 496

Institut für Radiochemie

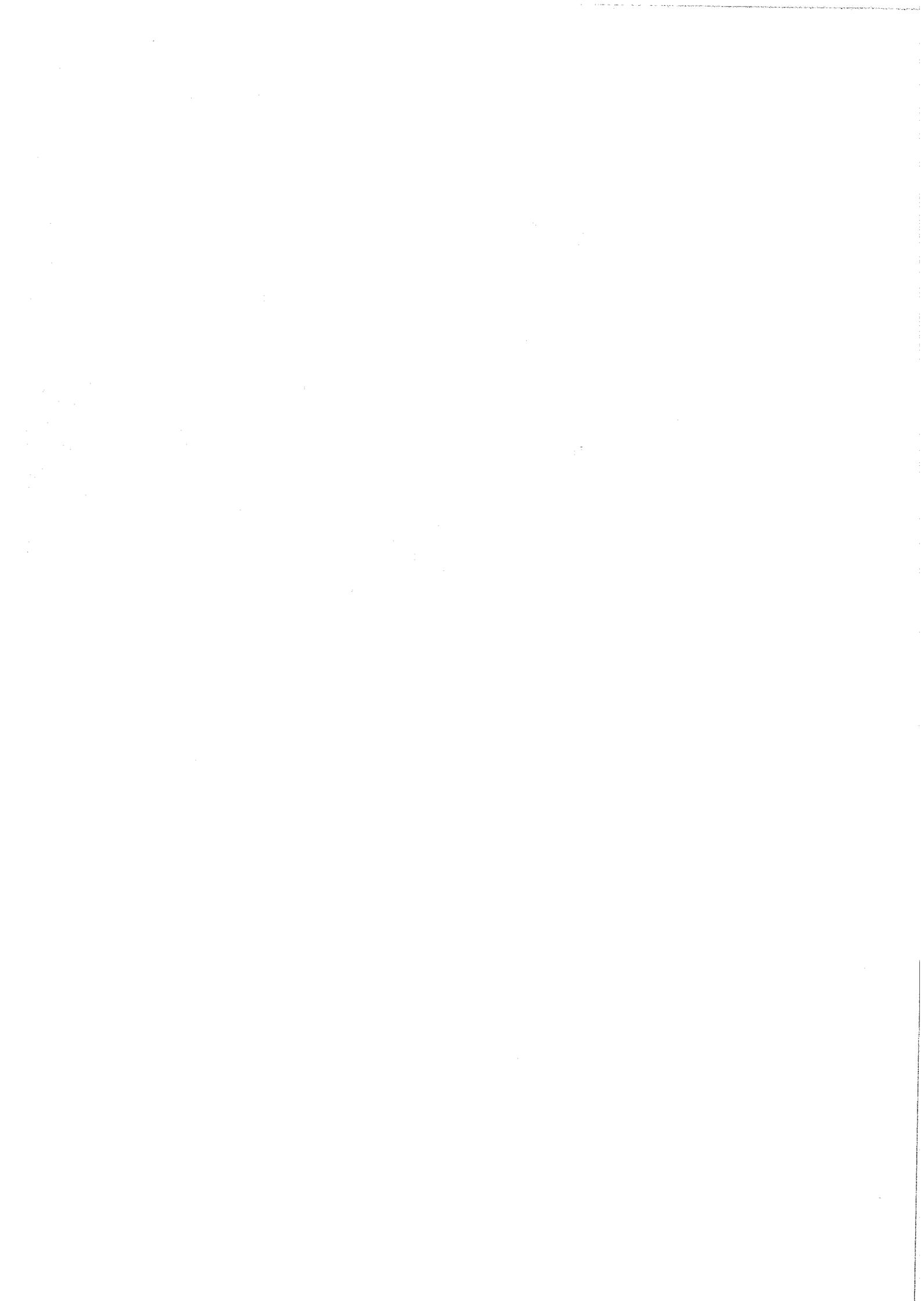
Über die Untersuchung der Reichweiteverteilung von Pu-Spaltprodukten
mit Hilfe der Stripping-Methode

M. Hollstein, H. Münzel



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE



Über die Untersuchung der Reichweiteverteilung von Pu-Spaltprodukten mit Hilfe der Stripping-Methode

Von M. HOLLSTEIN und H. MÜNDEL, Institut für Radiochemie, Kernforschungszentrum Karlsruhe

Mit 8 Abbildungen. (Eingegangen am 14. Dezember 1965)

Zusammenfassung Die zum Ablösen dünner Schichten von Aluminiumabsorbieren verwendete Stripping-Methode wurde untersucht. Dabei zeigte es sich, daß wesentlich elektropositivere Elemente als Aluminium nur teilweise mit abgelöst werden. Bei Untersuchungen der Reichweiteverteilung von entsprechend elektropositiven Spaltprodukten tritt dadurch eine Aktivitätsverschleppung auf. Eine Korrektur für diese Verschleppung ist möglich.

Mit Hilfe der Stripping-Methode wurde die Reichweiteverteilung von kumulativ gebildetem ^{140}Ba und ^{127}Sb in Aluminium bei der Spaltung von ^{239}Pu mit thermischen Neutronen untersucht. Die mittlere Reichweite und relative Reichweitedispersion betragen für ^{140}Ba 2,95 mg Al/cm² und 20,3%, für ^{127}Sb 3,6 mg Al/cm² und 23,1%. Der in den Reichweiteverteilungskurven auftretende niederenergetische Untergrund wird diskutiert.

Summary The stripping-method used for dissolving thin layers from aluminium absorbers was investigated. It was shown that elements considerably more electropositive than aluminium are only partially stripped. Therefore activity is retained by the catcher in investigations of the range distribution of fission products corresponding to those elements. A correction for this effect is possible.

The range distribution in aluminium of cumulatively formed ^{140}Ba and ^{127}Sb from the fission of ^{239}Pu by thermal neutrons was studied by means of the stripping-method. The mean range and relative range-dispersion are, respectively, for ^{140}Ba 2.95 mg Al/cm² and 20.3%, for ^{127}Sb 3.6 mg Al/cm² and 23.1%. The low-energy component which occurs in the range distribution curves is discussed.

Résumé On a étudié le «stripping» pour dissoudre des couches minces à partir d'absorbours d'aluminium. On a montré que des éléments qui sont beaucoup plus électropositifs que l'aluminium ne sont dissous qu'en partie. Au cours des études sur la distribution des parcours de produits de fission, qui sont pareils à ces éléments, l'activité est retenue dans l'absorbours. Ce dernier phénomène peut être corrigé.

A l'aide du «stripping» la distribution des parcours du ^{140}Ba et du ^{127}Sb , qui sont formés par cumulation, a été étudiée dans l'aluminium lors de la fission du ^{239}Pu par des neutrons thermiques. Pour le ^{140}Ba le parcours moyen est de 2,95 mg Al/cm² tandis que la dispersion du parcours est de 20,3%; les valeurs correspondantes du ^{127}Sb sont 3,6 mg Al/cm² et 23,1%. Le composant de basse énergie intervenant dans les courbes de distribution du parcours est discuté.

Einführung

Untersuchungen über die Reichweiteverteilung von Spaltprodukten geben Aufschluß über die Dispersion der kinetischen Energie dieser Produkte und ermöglichen Aussagen über den Ablauf der Spaltung. Sie werden meist nach der „Dünnes Target – dünne Fänger“-Methode durchgeführt. Dabei ermittelt man die Häufigkeit der von einem dünnen Target emittierten, kollimierten Spaltprodukte in dünnen aufeinanderfolgenden Schichten eines auch als Fänger bezeichneten Absorbiers. Dieser kann sowohl aus gasförmigen [1, 2, 3] als auch aus festem [4, 5] Material bestehen. Die Darstellung der Häufigkeit eines Spaltproduktes in den einzelnen Fängerschichten als Funktion der Eindringtiefe in den Absorber ergibt eine differentielle Reichweiteverteilungskurve. Ihr Maximum entspricht der mittleren Reichweite des Spaltproduktes in dem betreffenden Fängermaterial. Ihre Halbwertsbreite charakterisiert die Reichweitedispersion.

Für eine Untersuchung der Reichweiteverteilung in festen Absorbieren ist es erforderlich, daß der Fänger aus einer Reihe dünner, homogener Schichten gleichmäßiger Dicke besteht. Bei einem Aluminiumfänger zum Beispiel sollte die Foliendicke weniger als 0,4 μ betragen, um eine hinreichend gute Auflösung zu gewährleisten. Derartig dünne, uniforme Folien sind jedoch durch Walzen oder Hämmern nicht herzustellen. Die erwähnten Forderungen lassen sich auf indirektem Wege dadurch erfüllen, daß man den Fänger

nicht als Folienpaket zur Bestrahlung einsetzt, sondern ihn erst nachträglich durch ein elektrochemisches Verfahren, die sogenannte Stripping-Methode [6–10], in einzelne Schichten aufteilt. Dabei wird zunächst auf dem dicken Aluminiumfänger durch anodische Oxidation ein Oxidfilm erzeugt, dessen Stärke der angelegten Spannung direkt proportional ist. Anschließend wird die Oxidschicht durch eine wäßrige Lösung von Phosphorsäure und Chromtrioxid selektiv abgelöst. Diese beiden Schritte können beliebig oft wiederholt werden.

Nach den bisher veröffentlichten Untersuchungen über die Reichweiteverteilung von Spaltprodukten weichen die Werte für die Reichweitedispersion identischer Produkte in gleichen oder ähnlichen Absorbieren bei

1. S. KATCOFF, J. A. MISKEL und C. W. STANLEY, *Physic. Rev.* **74**, 631 (1948).
2. K. V. MARSH und J. A. MISKEL, *J. Inorg. Nucl. Chem.* **21**, 15 (1961).
3. K. A. PETRZHAK, YU. PETROV und E. A. SHLYAMIN, *Soviet Phys. JETP* **11**, 1244 (1960).
4. F. BROWN und B. H. OLIVER, *Canad. J. Chem.* **39**, 616 (1961).
5. N. K. ARAS, M. P. MENON und G. E. GORDON, *NYO* 10063, S. 43–45 (1963).
6. W. WALKENHORST, *Naturwissenschaften* **34**, 373 (1947).
7. G. HASS, *J. Opt. Soc. Amer.* **39**, 532 (1949).
8. L. HARRIS, *J. Opt. Soc. Amer.* **45**, 27 (1955).
9. J. A. DAVIES, J. FRIESEN und J. D. McINTYRE, *Canad. J. Chem.* **38**, 1526 (1960).
10. J. E. LEWIS und R. C. PLUMB, *Int. J. Appl. Rad. Isotopes* **1**, 33 (1956).

den einzelnen Autoren stark voneinander ab [1-5, 11, 12]. Diese Abweichungen beruhen sicherlich zum Teil auf der Verwendung unterschiedlicher experimenteller Anordnungen. Ferner ergaben sich unter gleichen Versuchsbedingungen für Spaltprodukte verschiedener Nukleonenzahlen merkbare Unterschiede in den Werten der Reichweitedispersion. Leider sind die experimentellen Fehler der Untersuchungsmethoden so groß, daß eine eindeutige Entscheidung über die Realität dieser Unterschiede kaum möglich ist. KATCOFF et al. [1] stellen fest, daß die Reichweitedispersion aller von ihnen untersuchten Spaltprodukte innerhalb der Fehlergrenzen konstant ist. Andererseits lassen ihre Ergebnisse die Deutung zu, daß die Reichweitedispersion mit steigender Nukleonenzahl und Bildungswahrscheinlichkeit der Spaltprodukte abnimmt. Es erschien daher wünschenswert, die Reichweiteverteilung einiger mit unterschiedlicher Ausbeute gebildeter Spaltprodukte zu untersuchen.

den aufeinanderfolgenden Stripping-Schritten bestimmt. Alle einzelnen Flächengewichte waren um den Mittelwert $\bar{F} = 75,0 \mu\text{g Al/cm}^2$ mit einer relativen Standardabweichung von 2,4% statistisch verteilt. Anschließend erfolgte eine Bestimmung der Aktivität von ^{111}Ag , ^{127}Sb und ^{140}Ba in den ersten zehn Stripping-Fraktionen, sowie im Rest des Targetbleches. Zur Abtrennung und Reinigung dieser Spaltprodukte wurden radiochemische Standardverfahren benutzt. Als Detektoren bei der Aktivitätsmessung dienten Methandurchflußzähler.

Zur Untersuchung der differentiellen Reichweiteverteilung der isobaren Reihen 111, 127 und 140 wurden drei Experimente mit Hilfe der Stripping-Methode durchgeführt, deren wichtigste Daten in Tab. 1 zusammengefaßt sind. Die Targets bestanden aus elektrolytisch auf elektropolierten Aluminiumträgern abgetrenntem ^{239}Pu . Um eine Kontamination des Kollimatorinnen und des Fängers mit Targetmaterial zu

Tabelle 1. Versuchsdaten der Experimente 1-3

Experiment	D_T	D_A	Kollimator		P	D_Z	D_V		\bar{G}	O_H	\bar{F}	t	$\Phi_{n,th}$
			K	L			1.	2.					
1	0,05	0,02 Al	1 : 5	5	<20	1,60	0,80	0,76	0,576	8,14	0,0707	7	$1,3 \cdot 10^{13}$
2	0,08	0,04 Al	1 : 5	30	3	1,05	0,98	—	0,281	4,09	0,0688	28	$3 \cdot 10^{13}$
3	0,15	0,02 Al 0,10 Al_2O_3	1 : 5	30	16	0,24	—	—	0,356	4,56	0,0780	7	$2,3 \cdot 10^{13}$

D_T = Flächengewicht des ^{239}Pu -Targets in mg Pu/cm²

D_A = Flächengewicht der Target-Abdeckung in mg Al bzw. $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{cm}^2$

K = Kollimatorgeometrie; Durchmesser: Länge

L = Kollimatorlänge in mm

P = Luftdruck im Kollimator nach der Bestrahlung; in mm Hg

D_Z = Flächengewicht des gesamten Materials zwischen halber Targetdicke und erster Stripping-Schicht, umgerechnet auf mg Al/cm²

$$D_Z = 0,168 D_T + D_A + 1,58 \cdot 10^{-4} \cdot P \cdot L + D_V$$

D_V = Flächengewicht des 1. und 2. Vorfängers in mg Al/cm

\bar{G} = mittlerer Gewichtsverlust des Hauptfängers je Stripping-Fraktion in mg

O_H = Gesamtoberfläche des Hauptfängers in cm²

\bar{F} = mittleres Flächengewicht einer Stripping-Fraktion in mg Al/cm²

t = Bestrahlungsdauer in d

$\Phi_{n,th}$ = Fluß der thermischen Neutronen in $n/\text{cm}^2 \text{ sec}$

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Anwendbarkeit der Stripping-Methode auf die Isolierung verschiedener Spaltprodukte aus dünnen Aluminium-Fängerschichten geprüft. Außerdem wurde versucht, die Reichweiteverteilung von ^{111}Ag , ^{127}Sb und ^{140}Ba in Aluminium bei der Spaltung von ^{239}Pu mit thermischen Neutronen zu bestimmen.

Experimentelles

Zur Untersuchung der Stripping-Methode wurden elektropolierte, 1 mm starke Targetbleche einer 0,1%igen Legierung von Natururan in Aluminium 5 Tage bei einem Fluß von $2,7 \cdot 10^{12} n/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ mit thermischen Neutronen bestrahlt. Um Verluste von Rückstoßkernen zu verhindern, waren die Targetbleche (20×40 mm) allseitig mit Blechen desselben Materials abgedeckt. Nach der Bestrahlung wurden sie dem Stripping-Prozeß unterworfen. Dieser entsprach dem von DAVIES et al. [9] angegebenen Verfahren. Das Flächengewicht jeder abgelösten Schicht wurde aus dem Gewichtsverlust des Targets zwischen

verhindern, waren sie mit dünnen aufgedampften Aluminiumschichten, im Experiment 3 zusätzlich mit einer $100 \mu\text{g/cm}^2$ starken Aluminiumoxidfolie abgedeckt. Als Kollimator diente im Experiment 1 eine mehrfach durchbohrte Aluminiumplatte (Abb. 1). Er wird im folgenden als Lochkollimator bezeichnet. Bei den Experimenten 2 und 3 wurde ein sogenannter „streuarmer“ Kollimator verwendet, in dem mehrere Blendenringe angebracht waren (Abb. 2). Diese sollten verhindern, daß an der Kollimatorwand gestreute Spaltprodukte in den Fänger gelangten. Die Kollimatorgeometrie, definiert als Verhältnis von Durchmesser zu Länge, war für beide Anordnungen gleich. Die Fänger bestanden aus 0,4 bis 1,0 mm dicken elektropolierten Aluminiumblechen (99,99%). Vor dem eigentlichen Fänger waren beim Experiment 1 zwei, beim Experiment 2 ein Vorfänger aus dünner Alumi-

11. E. M. DOUTHETT und D. H. TEMPLETON, Physic. Rev. **94**, 128 (1954).

12. W. M. GOOD und E. O. WOLLAN, Physic. Rev. **101**, 249 (1956).

niemfolie (99,99%) angebracht. Ihr Flächengewicht wurde durch Wägung und Ausmessen bestimmt. Um eine Abbremsung und Streuung der Spaltprodukte in der zwischen Target und Fänger befindlichen Luft weitgehend auszuschalten, wurden die Versuchsanordnungen in evakuierten Kapseln zur Bestrahlung eingesetzt. Nach der Bestrahlung erfolgte eine Messung des Gasdruckes. Das Ablösen der einzelnen Absorber-

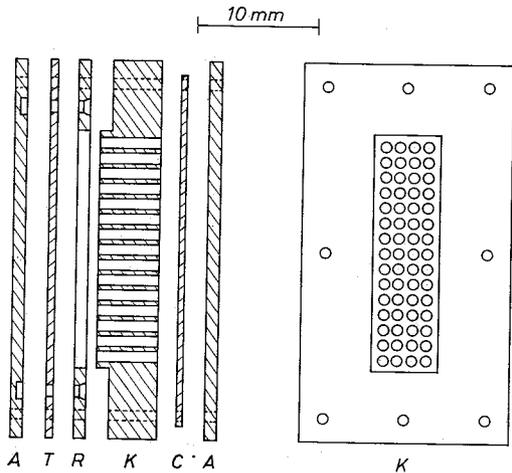


Abb. 1: Targetanordnung des Experiments 1: *T* = Target; *K* = Kollimator; *C* = Fänger; *R* = Rahmen; *A* = Abdeckplatte

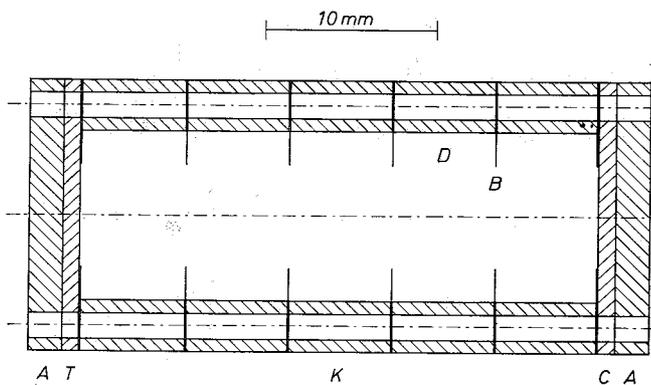


Abb. 2: Targetanordnung der Experimente 2 und 3: *T* = Target; *K* = Kollimator; *C* = Fänger; *D* = Distanzring; *B* = Blendenring; *A* = Abdeckplatte

schichten und die Bestimmung der Aktivitäten erfolgten wie bei der Untersuchung der Stripping-Methode. Zur Auswertung wurden die aus den Stripping-Fractionen und Vorfängern erhaltenen Spaltproduktaktivitäten auf das mittlere Flächengewicht \bar{F} einer Stripping-Fraktion normiert. Diese Werte werden mit A_{rel} bezeichnet. Die absolute Eindringtiefe D_i der in einer Fraktion i gefundenen Spaltprodukte ist die Summe folgender Flächengewichte:

$$D_i = \bar{F} (i - 0,5) + D_Z \quad [\text{mg Al/cm}^2].$$

Dabei ist D_Z das Flächengewicht des gesamten Materials zwischen halber Targetdicke und erster Stripping-Schicht, umgerechnet auf mg Al/cm^2 .

Ergebnisse und Diskussion

1. Untersuchung der Stripping-Methode

Bezeichnet man mit

A_i' die in der Fraktion i gefundene Aktivität (auf \bar{F} normiert),

A_i die in der entsprechenden Fängerschicht tatsächlich vorhandene Aktivität (auf \bar{F} normiert), so sollte wegen der gleichmäßigen Verteilung der Spalt-

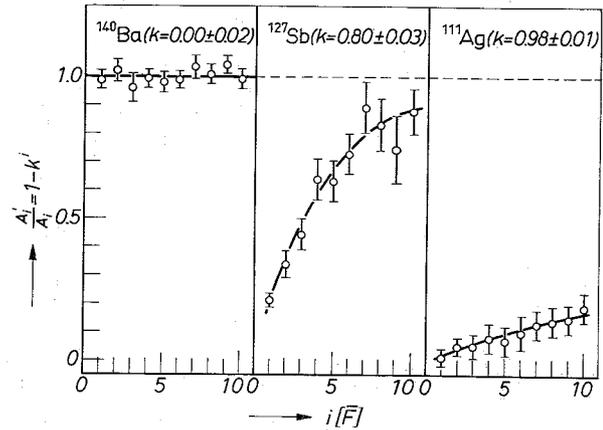


Abb. 3: Verschleppung der Aktivitäten beim Stripping von Ba, Sb und Ag: \circ = experimentelle Punkte mit Fehlergrenzen; — = berechneter Verlauf nach Formel (2); $1 \bar{F} = 0,075 \text{ mg Al/cm}^2$

produkte in den Targets der Testversuche für jede Stripping-Fraktion gelten:

$$\frac{A_i'}{A_i} = 1.$$

Dabei ergibt sich A_i aus der auf \bar{F} normierten Spaltproduktaktivität im gesamten Targetblech. Das Ergebnis dieser Untersuchung zeigt Abb. 3. Für jede Stripping-Fraktion i ist der Quotient A_i'/A_i aufgetragen. Im Fall des ^{140}Ba treten innerhalb der Fehlergrenzen keine Abweichungen vom Sollwert auf. Beim ^{127}Sb und ^{111}Ag hingegen liegt der Wert für A_i'/A_i unter dem Sollwert und nähert sich diesem erst mit steigender Fraktionszahl. Die Ergebnisse deuten darauf hin, daß die Anwendbarkeit der Stripping-Methode begrenzt wird durch das Normalpotential des zu isolierenden Elements. Ist letzteres wesentlich edler als das Fängermaterial, so findet eine Verschleppung der Aktivitäten statt. Unter der Annahme, daß ein jeweils konstanter Bruchteil k (Verschleppungsfaktor) der in der Schicht i vorhandenen Aktivität A_i in die nächste Schicht verschleppt wird, kann dieser Vorgang durch die Funktion

$$A_n' = (1 - k) \sum_{i=1}^n A_i \cdot k^{n-i}$$

beschrieben werden. Dabei ist A_n' die in der n -ten Fraktion gefundene Aktivität. Daraus folgt für jede einzelne Fraktion i :

$$A_i = \frac{A_i' - k \cdot A_{i-1}'}{1 - k}. \quad (1)$$

Bei einer gleichmäßigen Aktivitätsverteilung im Fänger ($A_i = \text{konst.}$) gilt:

$$A_i = \frac{A_i'}{1 - k^i} \quad (2)$$

Die in Abb. 3 wiedergegebenen Kurven stellen den Verlauf dieser Funktion für die folgenden, sich aus der besten graphischen Anpassung an die experimentellen Punkte ergebenden Werte von k dar:

$$\begin{aligned} \text{Ba: } & 0,00 \pm 0,02 \\ \text{Sb: } & 0,80 \pm 0,03 \\ \text{Ag: } & 0,98 \pm 0,01. \end{aligned}$$

Die Größe des Verschleppungsfaktors k ist unabhängig von der beim Ablösen der Oxidschicht zugesetzten Trägermenge und zwar innerhalb des Bereiches 0,3 bis 400 $\mu\text{g/ml}$.

Nach diesen Ergebnissen ist die Stripping-Methode bei Aluminiumfängern nur auf solche Elemente ohne nachträgliche Korrekturen anwendbar, deren Normalpotential nicht wesentlich positiver ist als $-1,7\text{ V}$ (Al). Durch die Verwendung von Fängern aus elektropositiveren Elementen kann der Anwendungsbereich erweitert werden. So läßt sich die Stripping-Methode nach DAVIES et al. mit Silizium [13], nach MCCARGO et al. mit Wolfram [14], sowie nach CHANNING und WHITTON mit Gold [15] durchführen. Die Benutzung der beiden zuletzt genannten Elemente führt jedoch zu einer erhöhten Streuung der Spaltprodukte im Absorber.

2. Differentielle Reichweiteverteilung

Die aus drei Experimenten erhaltenen Reichweiteverteilungskurven sind in den Abb. 4 bis 7 dargestellt. Auf der Abszisse ist jeweils die Eindringtiefe D_i als Flächengewicht in mg Al/cm^2 aufgetragen. Die Ordinaten geben die relative Spaltproduktaktivität A_{rel} , bezogen auf gleiche Höhe der Verteilungsmaxima, an. Dabei entspricht eine Ordinateneinheit etwa folgenden, für chemische Ausbeute korrigierte Zählraten bei Meßbeginn (in Imp/min):

Nuklid	Experiment 1	Experiment 2	Experiment 3
^{140}Ba	1300	2100	700
^{127}Sb	100	—	—

Die für die experimentellen Punkte angegebenen Fehlergrenzen ergeben sich als Summe der relativen Fehler von \bar{F} , der Abfallkurvenanalyse und der Korrekturen für chemische Ausbeute und Selbstabsorption. Bei nicht eingezeichneten Fehlergrenzen liegen die Abweichungen innerhalb der die Punkte kennzeichnenden Kreise. Der sich über die mittlere Reichweite hinaus erstreckende Teil der Verteilungskurven wurde nach der Methode der logarithmischen Differentiation [16] auf eine Gaußverteilung analysiert. Den Verlauf der berechneten Gaußverteilung geben die gestrichelten Linien der Abb. 4-7 wieder. Die damit teilweise zusammenfallende experimentelle Verteilung ist als ausgezogene Linie dargestellt. Im Fall des ^{127}Sb

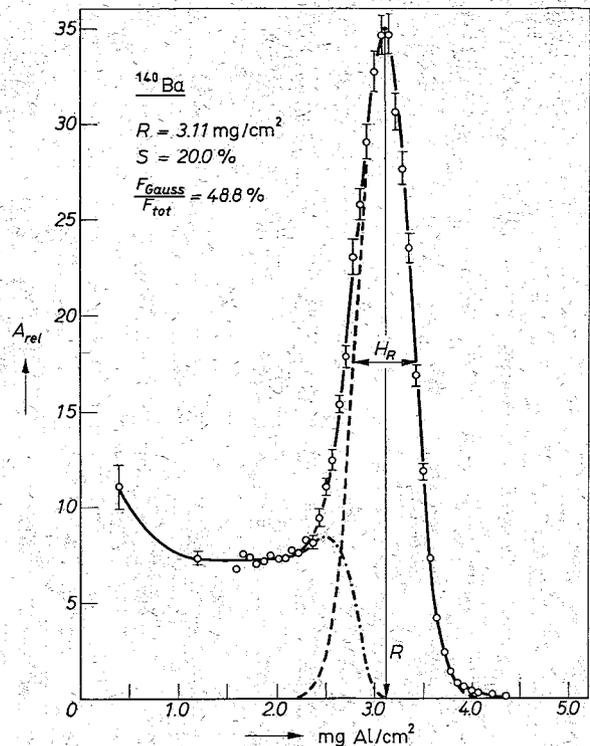


Abb. 4. Isobare Reichweiteverteilung des ^{140}Ba , aus Experiment 1

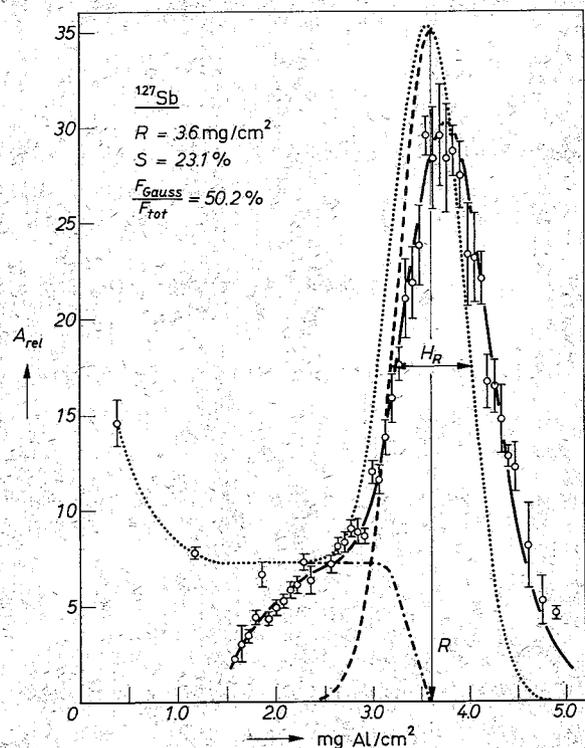


Abb. 5. Isobare Reichweiteverteilung des ^{127}Sb , aus Experiment 1

13. J. A. DAVIES, G. C. BALL, F. BROWN und B. DOMEJ, *Canad. J. Physics* **42**, 1070 (1964).
14. M. MCCARGO, J. A. DAVIES und F. BROWN, *Canad. J. Physics* **41**, 1231 (1963).
15. D. A. CHANNING und J. L. WHITTON, *Physics Letters* **13**, 27 (1964).
16. L. G. PREUSS und J. P. ESCARFILL, *Nucl. Instr. Meth.* **9**, 212 (1960).

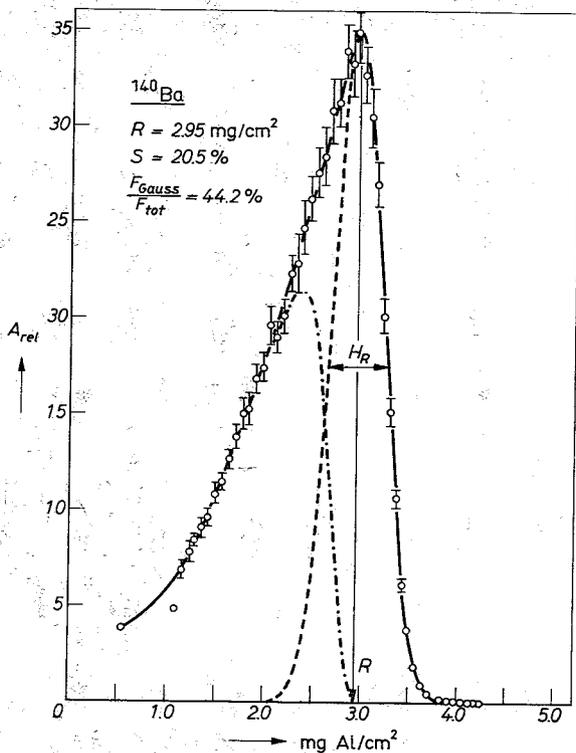


Abb. 6. Isobare Reichweiteverteilung des ¹⁴⁰Ba, aus Experiment 2

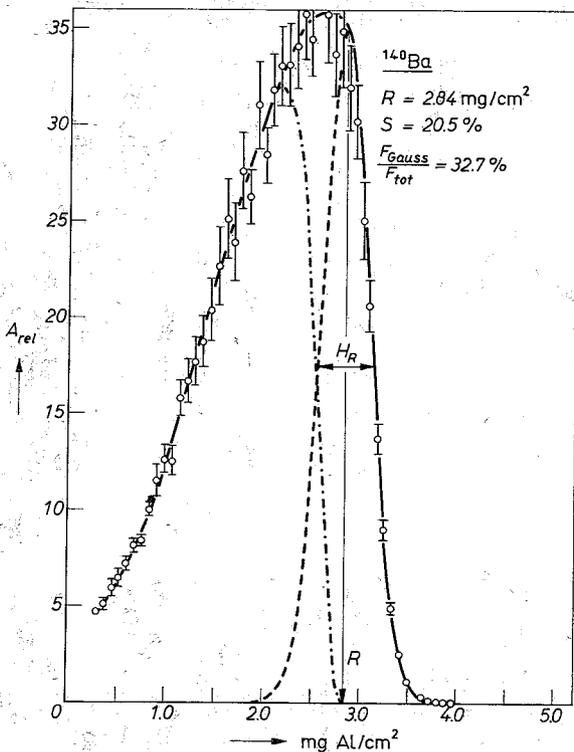


Abb. 7. Isobare Reichweiteverteilung des ¹⁴⁰Ba, aus Experiment 3

wurde eine Korrektur für die Aktivitätsverschleppung beim Stripping-Prozess nach Formel (1) mit $k = 0,80$ durchgeführt. Die korrigierte Verteilung ist in Abb. 5 punktiert gezeichnet. Der strichpunktiert wiedergegebene Verlauf des Untergrundes ergibt sich durch Subtraktion der berechneten Gaußverteilung von der

die experimentellen Punkte verbindenden Kurve. Die Ergebnisse der drei Reichweiteverteilungsexperimente sind in Tab. 2 zusammengestellt.

Tabelle 2. Ergebnisse der Experimente 1-3

Experiment	Spaltprodukt	R [mg Al/cm ²]	S [%]	$F_{\text{Gauß}}/F_{\text{tot}}$ [%]
1	¹²⁷ Sb	$3,6 \pm 0,2$	$23,1 \pm 1,7$	50,2
1	¹⁴⁰ Ba	$3,11 \pm 0,15$	$20,0 \pm 1,0$	48,8
2	¹⁴⁰ Ba	$2,95 \pm 0,10$	$20,5 \pm 1,0$	44,2
3	¹⁴⁰ Ba	$2,84 \pm 0,10$	$20,5 \pm 1,0$	32,7

Mittelwerte für ¹⁴⁰Ba: $R = (2,95 \pm 0,10)$ mg Al/cm²
 $S = (20,3 \pm 1,0)$ %

Die für die mittlere Reichweite R angegebenen Fehler setzen sich zusammen aus dem Fehler der Gaußanalyse (Lage des Maximums), des mittleren Flächengewichts einer Stripping-Fraktion und des Flächengewichts aller vor dem Hauptfänger vorhandenen Absorber. Der Fehler der relativen Reichweitedispersion $S = H_R/R$ besteht aus dem Fehler der Gaußanalyse (Halbwertsbreite H_R) und der mittleren Reichweite R . Die in der Tabelle enthaltenen Quotienten $F_{\text{Gauß}}/F_{\text{tot}}$ stellen den relativen Flächenanteil der Gaußverteilung an der Gesamtverteilung dar.

Eine Untersuchung der 50 Stripping-Fractionen des Experiments 1 ergab für ¹¹¹Ag als Folge der Stripping-Verschleppung keine wesentlich über der Nullrate liegenden Zählraten. Durch eine Aktivitätsbilanz konnte ein Verlust von ¹¹¹Ag ausgeschlossen werden. Das berechnete Verhältnis der absoluten Spaltproduktaktivitäten im gesamten Fänger (Vorfänger, Stripping-Fractionen und Fängerrest) zeigt eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Werten:

	berechnet	experimentell
¹⁴⁰ Ba/ ¹¹¹ Ag	18,7	18,1
¹²⁷ Sb/ ¹¹¹ Ag	2,8	2,6

31,2% der gesamten ¹¹¹Ag-Aktivität wurde in den beiden Vorfängern gefunden, die übrige Aktivität befand sich im Fängerrest.

Die aus den Verteilungskurven des ¹²⁷Sb und ¹⁴⁰Ba erhaltenen Werte für die mittleren Reichweiten stimmen innerhalb der Fehlergrenzen mit den entsprechenden Werten anderer Autoren überein. Rechnet man die von KATCOFF et al. [1] bei der Spaltung von ²³⁹Pu mit thermischen Neutronen in Luft bestimmten Reichweiten auf Reichweiten in Aluminium um*, so kommt man zu folgender Gegenüberstellung:

	cm Luft (15 °C; 760 mm Hg)	mg Al/cm ²	mg Al/cm ² (diese Arbeit)
¹²⁷ Sb	$2,09 \pm 0,03$	$3,40 \pm 0,15$	$3,6 \pm 0,2$
¹⁴⁰ Ba	$1,92 \pm 0,03$	$3,12 \pm 0,15$	$2,95 \pm 0,10$

* Nach der Bragg'schen Regel, sowie nach den Ergebnissen von ALEXANDER und GAZDIK [17] kann für den hier beschriebenen Massenbereich gesetzt werden $R_{\text{Al}} = 1,35 \cdot R_{\text{Luft}}$ [mg/cm²].

17. J. M. ALEXANDER und M. F. GAZDIK, Physic. Rev. **120**, 874 (1960).

Die Reichweite von ^{140}Ba in Aluminium bei der Spaltung schwerer Kerne mit thermischen Neutronen beträgt in mg Al/cm^2 nach:

BROWN und OLIVER [4]:	$2,82 \pm 0,11$ (^{235}U)
ALEXANDER und GAZDIK [17]:	$2,98 \pm 0,01$ (^{235}U)
FINKLE et al. [18]:	$2,75 \pm 0,03$ (^{235}U)
MÜNDEL und ISHMORI [19]:	$3,04 \pm 0,03$ (^{239}Pu)

Beim Vergleich ist zu berücksichtigen, daß nach FINKLE et al. [18] die Reichweiten schwerer Spaltprodukte bei der Spaltung von ^{239}Pu um ungefähr 5% höher liegen als bei der Spaltung von ^{235}U .

Die gegenüber dem ^{140}Ba um rund 14% erhöhte relative Reichweitedispersion des ^{127}Sb könnte in ursächlichem Zusammenhang mit dessen niedrigerer Spaltausbeute stehen. Es ist jedoch nicht sicher, ob dieser Unterschied signifikant ist, da der in der Tab. 2 für die Reichweitedispersion des ^{127}Sb angegebene Fehler möglicherweise durch systematische Fehler bei der Korrektur für die Stripping-Verschleppung vergrößert wird. Für eine Untersuchung des Zusammenhanges zwischen Reichweitedispersion und Bildungswahrscheinlichkeit der Spaltprodukte ist die bei der Verwendung von Aluminiumfängern in Verbindung mit der Stripping-Methode erzielbare Genauigkeit zu gering. Leider liegt der größte Teil der Spaltprodukte in einem Bereich der Spannungsreihe, bei dem mit einer starken Stripping-Verschleppung zu rechnen ist. Möglicherweise hängt die Reichweitedispersion ferner von der Nukleon- und Ladungszahl des Targetkernes ab. So ist die Reichweitedispersion für ^{140}Ba bei der Spaltung von ^{239}Pu nach dem Ergebnis dieser Arbeit um den Faktor 1,16 größer als der von BROWN und OLIVER [4] für dasselbe Spaltprodukt bei der Spaltung von ^{235}U angegebene Wert. Die von KATCOFF et al. [1] bei der Spaltung von ^{239}Pu ermittelten Dispersionen liegen um den Faktor 1,12 höher als die entsprechenden Werte von PETRZHAK et al. [3] bei der Spaltung von ^{235}U .

Abgesehen von dem Problem, einen Fänger direkt oder indirekt in dünne, uniforme Schichten genau bekannter Stärke zu unterteilen (Folienpakete oder Stripping-Methode), wird die Genauigkeit der Ergebnisse differentieller Reichweiteverteilungs-Experimente aus anderen Gründen wesentlich verringert. Das Ziel derartiger Untersuchungen ist, Aufschlüsse über die vom Spaltprozeß herrührende Dispersion der kinetischen Energie primärer Fragmente zu erhalten. Diese Dispersion kann aber aus den experimentellen Ergebnissen nur unter Berücksichtigung mehrerer Korrekturen berechnet werden. So ist zu korrigieren für die bei der Verdampfung prompter Neutronen auftretende Energiedispersion und für die Anteile an der experimentellen Reichweitedispersion, die durch Abbremsen der Spaltprodukte in Target und Fänger, sowie durch die spezifischen Eigenschaften des Kollimators zustande kommen. Die Größe der einzelnen Korrekturen ist auf direktem Wege nicht zu erhalten. Sie kann nur abgeschätzt oder bestenfalls theoretisch berechnet werden. Wie wesentlich zum Beispiel der durch den Abbremsprozeß verursachte Dispersionsanteil in die Breite der

experimentellen Reichweiteverteilung eingeht, zeigt ein Vergleich der Ergebnisse von Experimenten mit festen und gasförmigen Fängern. So beträgt die für Targetdicke und Kollimatorgeometrie korrigierte relative Reichweitedispersion des ^{140}Ba nach PETRZHAK et al. [3] bei Luft bzw. Argon als Absorber 9,9% bzw. 11,4%, nach BROWN und OLIVER [4] und den Ergebnissen dieser Arbeit bei Aluminiumfängern zwischen 16% und 20%. Als Ursache dieses Unterschiedes kommen zwei Möglichkeiten in Betracht. Einerseits werden bei differentiellen Reichweiteexperimenten mit gasförmigen Fängern nicht alle zwischen den zur Abgrenzung der Fängerschichten verwendeten Kunststoff-Folien gestreuten Spaltprodukte erfaßt. Dazu wäre es nötig, auch die Spaltprodukthäufigkeit auf der Kollimatorwand zu untersuchen. Bei festen Fängern werden hingegen alle im Absorber gestreuten Spaltprodukte in die Analyse einbezogen. Daher wird möglicherweise bei Versuchen mit gasförmigen Fängern eine kleinere Reichweitedispersion vorgetäuscht. Andererseits könnte die Abbremsung von Spaltprodukten in festen Absorbieren generell zu einer größeren Reichweitedispersion führen als in gasförmigem Material. Diese Annahme wird durch die Ergebnisse von GILAT und ALEXANDER [20] gestützt. Sie fanden bei der Untersuchung schwerer Rückstoßkerne für Aluminiumabsorber eine gegenüber Helium um den Faktor 1,5 erhöhte Reichweitedispersion. Bei Spaltprodukten liegt dieser Faktor nach den Resultaten von BROWN und OLIVER [4] sowie PETRZHAK et al. [3] bei 2,3.

3. Niederenergetischer Untergrund

Die Eigenschaften des Kollimators bestimmen wesentlich die Form der Reichweiteverteilungskurven im niederenergetischen Bereich. Sowohl in den von BROWN und OLIVER [4] als auch in den von uns erhaltenen Verteilungskurven tritt ein sich bis zur mittleren Reichweite erstreckender, niederenergetischer Untergrund auf. Er ist in den Abb. 4–7 strichpunktiert dargestellt. Sein relativer Anteil U an der Fläche unter der experimentellen Gesamtverteilung beträgt

$$U = 100 - \frac{F_{\text{Gauß}}}{F_{\text{tot}}} [\%].$$

Abb. 8 gibt den Verlauf dieses Untergrundes bei der Reichweiteverteilung des ^{140}Ba für die Experimente 1–3 wieder. Die Kurven a (Experiment 1) und b (Experiment 2) sind hinsichtlich Fläche und Reichweite auf die Kurve c (Experiment 3) normiert. Die Form der Untergrundverteilung a unterscheidet sich grundlegend von den Kurven b und c . Transformiert man jedoch die Ordinatenwerte der Verteilung b derart, daß ihr Maximum mit dem von a zusammenfällt,

18. B. FINKLE, E. J. HOAGLAND, S. KATCOFF und N. SUGARMAN, NNES IV, 9, McGraw-Hill, New York, 1951, S. 463–471.

19. H. MÜNDEL und T. ISHMORI, Veröffentlichung in Vorbereitung.

20. J. GILAT und J. M. ALEXANDER, Proc. 3rd Conf. on Reactions between Complex Nuclei, University of California Press, 1963, S. 387.

so zeigt der rechte Ast beider Verteilungen einen identischen Verlauf. Der linke Ast der transformierten Kurve *b* ist in der Abbildung mit *d* bezeichnet. Subtrahiert man ihn von der Verteilung *a*, so erhält man den annähernd linear verlaufenden Teil *e*.

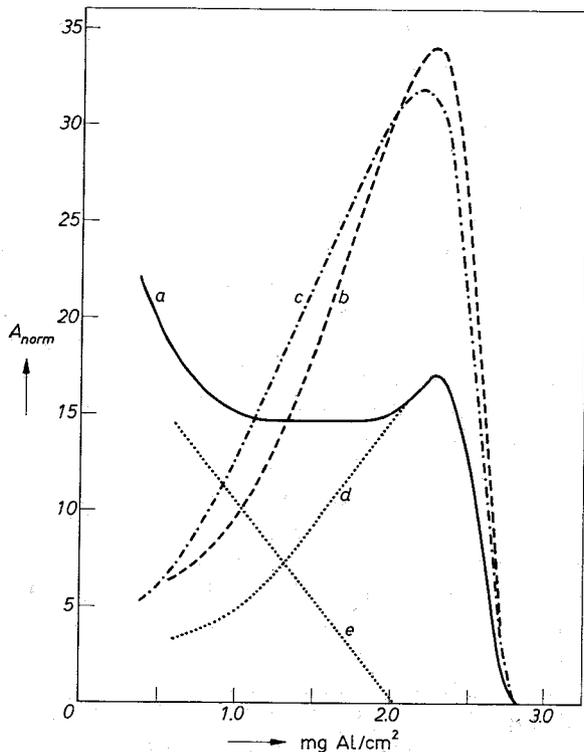


Abb. 8. Niederenergetischer Untergrund der Reichweiteverteilungen des ^{140}Ba aus den Experimenten 1-3, auf gleiche Flächen und Reichweiten normiert. *a* = Experiment 1; *b* = Experiment 2; *c* = Experiment 3

Die Entstehung des niederenergetischen Untergrundes könnte auf folgende Ursachen zurückgeführt werden:

1. Kontamination des Kollimators und Fängers mit Targetmaterial.
2. Streuung der Spaltprodukte im Target, in dessen Abdeckung und im Gas zwischen Target und Fänger („direkte Streuung“).
3. Streuung der Spaltprodukte an der Kollimatorwand („Wandstreuung“).

Auf eine Kontamination durch ^{239}Pu wurde der im Experiment 3 verwendete Kollimator aktivierungsanalytisch untersucht. Das Resultat zeigte, daß die Aluminiumoxidfolie weniger als $2 \cdot 10^{-3}\%$ und der erste Blendenring weniger als $2 \cdot 10^{-4}\%$ des gesamten Target-Plutoniums enthielten. Demnach läßt sich eine Kontamination durch eine Targetabdeckung von bereits $20 \mu\text{g Al/cm}^2$ weitgehend verhindern. Daher ist eine Kontamination auch bei den Experimenten 1 und 2 mit großer Wahrscheinlichkeit auszuschließen. Der Effekt der direkten Streuung ist quantitativ schwierig zu erfassen. Er hängt sowohl vom Flächengewicht als auch von der Nukleon- und Kernladungszahl des Absorbers ab. Die Wandstreuung sollte von der effektiven Oberfläche O_{eff} der Kollimatorwand und von der

Targetoberfläche O_T abhängen. Die Größe O_{eff} wird durch denjenigen Teil der Kollimatorwand bestimmt, von dem aus Spaltprodukte durch Streuung in den Fänger gelangen können. Definiert man W als Parameter der Wandstreuung (mit dem Radius r des Kollimators und dessen Höhe h) folgendermaßen:

$$W = \frac{O_{\text{eff}}}{O_T} = \frac{2 r \pi h}{r^2 \pi} = 2 \frac{h}{r},$$

so ist der Anteil U_W des durch Wandstreuung hervorgerufenen Untergrundes an der gesamten Untergrundverteilung $U_W = f(W)$. Der wesentliche Unterschied zwischen dem Experiment 1 und den Experimenten 2 und 3 besteht darin, daß bei letzteren eine Wandstreuung weitgehend ausgeschlossen wurde. Der Wert des Parameters W war gegenüber dem Lochkollimator des Experiments 1 ($W=20$) auf $0,4\%$ reduziert ($W=0,08$).

Die Analyse der in Abb. 8 dargestellten Untergrundverteilungen läßt folgende Deutung zu. Der niederenergetische Untergrund ist bei den Experimenten 2 und 3 fast ausschließlich durch eine direkte Streuung verursacht worden. Beide Verteilungen zeigen einen sehr ähnlichen Verlauf. Der Untergrund beim Experiment 1 dagegen kann als komplex angesehen werden. Er ist zu ungefähr gleichen Teilen durch direkte Streuung (Kurve *d*) und durch Wandstreuung (Kurve *e*) entstanden. Bezieht man die Ergebnisse von BROWN und OLIVER [4] in die Auswertung ein, so zeigt sich, daß der Quotient U_W/W für die Experimente mit Lochkollimatoren innerhalb des Bereiches $W = 12-20$ konstant ist. Sein Wert beträgt ungefähr 1,3. Demnach ergibt sich für die Wandstreuung folgende empirische Beziehung: $U_W = 1,3 W = 2,6 h/r$. Eine Reduzierung der Wandstreuung durch Verringerung des Verhältnisses h/r verschlechtert jedoch die Kollimierung, die mit steigendem h/r günstiger wird.

Der vom Experiment 1 bis zum Experiment 3 zunehmende Anteil der direkten Streuung an der Gesamtverteilung kann auf die steigende Massenbelegung zwischen Target und Fänger zurückgeführt werden. Die Größe dieses Effektes ist jedoch unerwartet hoch. So nimmt zum Beispiel der Anteil der direkten Streuung beim Experiment 3 gegenüber dem Experiment 2 um rund 20% zu. Dabei entspricht die Erhöhung der Massenbelegung nur ungefähr 6% der mittleren Reichweite. Im Gegensatz dazu beeinflußt die zunehmende Massenbelegung nicht die Aktivitätsverteilung auf den Blendenringen der „streuarmer“ Kollimatoren. Bei den Experimenten 2 und 3 wurden die ^{140}Ba -Aktivitäten in den jeweils vier mittleren Blendenringen bestimmt. Wie Tab. 3 zeigt, stimmen die auf die Gesamtaktivität $\sum A_x$ in allen vier Ringen und im Fänger bezogenen Aktivitätsanteile für jeden Blendenring sehr gut überein. Zum Vergleich mit den experimentell bestimmten Werten sind in Tab. 3 außerdem die berechneten Aktivitätsanteile aufgeführt. Sie wurden durch eine graphische Integration der von verschiedenen Targetpunkten über alle einen bestimmten Blendenring einschließenden Raumwinkel emittierten Fragmente erhalten. Den Einfluß der Kernladungszahl des zwischen

Tabelle 3. Aktivitätsverteilung im Kollimator bei den Experimenten 2 und 3. Die Blendenringe sind vom Target aus fortlaufend nummeriert

$x:$	Blendenringe					Fänger 5
	1	2	3	4		
$\frac{A_x}{\Sigma A_x}$ [%]	Experiment 2	68,7 ± 3	19,4 ± 1	7,1 ± 0,4	2,9 ± 0,2	1,9 ± 0,2
	Experiment 3	68,0 ± 3	19,6 ± 1	7,1 ± 0,4	2,8 ± 0,2	2,5 ± 0,2
	berechnet	58 ± 9	25 ± 3	9,6 ± 1,2	4,7 ± 0,7	2,7 ± 0,4

Target und Fänger vorhandenen Materials auf den Anteil der direkten Streuung an der experimentellen Reichweiteverteilung macht ein Vergleich des Experiments 2 mit dem von BROWN und OLIVER [4] deutlich. In beiden Fällen war das Flächengewicht des Targets praktisch gleich. Der Kollimator enthielt bei BROWN und OLIVER Wasserstoff, dessen Massenbelegung $40 \mu\text{g H}_2/\text{cm}^2$ betrug. Beim Experiment 2 befand sich Luft im Kollimator, und zwar $15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$. Der für das Experiment von BROWN und OLIVER abzuschätzende Anteil der direkten Streuung entspricht ungefähr 6%, beim Experiment 2 dagegen beträgt dieser Anteil 55%.

Auf Grund der Kollimatorabmessungen sollte die Ausbeute der nicht gestreuten Spaltprodukte, also der Anteil unter der Gauß-Kurve, im Fänger ungefähr 0,5% der in 2π -Geometrie vom Target isotrop emittierten Fragmente betragen. Nach der Analyse des niederenergetischen Untergrundes beim Experiment 1 liegt daher die Ausbeute aller durch Wandstreuung in den Fänger gelangten Spaltprodukte bei 0,25% (bezogen auf die isotrope Gesamtemission vom Target in 2π -Geometrie). ENGELKEMEIR und WALTON [21] fanden bei speziell auf das Problem der Streuung von Spaltprodukten ausgelegten Versuchen, daß von den aus einem U_3O_8 -Target ($60 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) in 2π -Geometrie isotrop emittierten Fragmenten 0,25% an Aluminium unter vorzugsweise kleinen Winkeln (um 3°) gestreut werden. Obwohl die unterschiedlichen experimentellen Anordnungen einen quantitativen Vergleich nicht ohne

weiteres zulassen, ist zumindest in der Größenordnung der Wandstreuung eine Übereinstimmung vorhanden.

4. Schlußbemerkung

Für Untersuchungen der Reichweiteverteilung von Spaltprodukten ist die Stripping-Methode nur begrenzt anwendbar. Bei der Isolierung von Spaltprodukten, deren Normalpotential positiver ist als das des Fängermaterials, tritt eine Aktivitätsverschleppung auf, für die bei nicht zu großen Potentialdifferenzen korrigiert werden kann.

Die Verteilungsbreite der Reichweiten ist in festen Absorbieren erheblich größer als in gasförmigen. Da für die Berechnung der Energiedispersion primärer Fragmente ohnehin mehrere Korrekturen beträchtlicher Größe anzubringen sind, ist die Verwendung gasförmiger Fänger bei Untersuchungen der Reichweiteverteilung vorteilhaft. Werden feste Fänger benutzt, so sollten die Kollimatoren ein Gas möglichst niedriger Ordnungszahl enthalten. Durch einen entsprechenden Aufbau der Kollimatoren ist eine Wandstreuung weitgehend auszuschalten.

Herrn Professor Dr. W. SEELMANN-EGGEBERT möchten wir unseren Dank für die großzügige Förderung dieser Arbeit aussprechen. Wir danken ferner Fräulein B. PAULY für ihre Mithilfe bei der Durchführung und Auswertung der Experimente.

21. D. ENGELKEMEIR und G. N. WALTON, AERE-R 4716 (1964).