

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

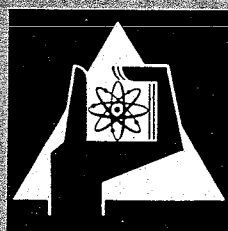
August 1966

KFK 498

Institut für Radiochemie

Die Reichweite von Fragmenten bei der Spaltung von ^{239}Pu
mit thermischen Neutronen

M. Hollstein, H. Münzel



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

Die Reichweite von Fragmenten bei der Spaltung von ^{239}Pu mit thermischen Neutronen

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

Mit 5 Abbildungen. (Eingegangen am 14. Dezember 1965)

Zusammenfassung Eine Methode wurde entwickelt, die es mit einer „Dickes Target – dicker Fänger“-Anordnung ermöglicht, Reichweiten von Spaltprodukten in Aluminium zu bestimmen. Das Target besteht dabei aus einer stark verdünnten Legierung von ^{239}Pu in Aluminium, der Fänger aus reinem Aluminium. Daher kann eine Korrektur für die unterschiedliche Streuung der Spaltprodukte in Target und Fänger vernachlässigt werden. Mit Hilfe dieser Methode wurden die Fragmentreichweiten von ^{139}Ba und ^{139}Cs , sowie die kumulativen Reichweiten von ^{139}Ba , ^{139}Cs und ^{139}Xe bestimmt. Nach unseren Ergebnissen sind die Fragmentreichweiten R_f innerhalb einer isobaren Reihe verschieden. Ihre relativen, auf die Isobarenreichweite R_{is} bezogenen Werte hängen linear von der Differenz $Z-Z_p$ ab: $R_f/R_{is} = 1,0 - 0,037 (Z-Z_p)$. Unter der Annahme einer für alle Glieder einer isobaren Reihe konstanten Reichweitedispersion folgt aus dieser Gleichung, daß die bisher ermittelten Werte für die Dispersion der kinetischen Energie primärer Fragmente um einen Faktor von ungefähr 2 zu groß sind.

Summary A method was developed by which it is possible to measure the ranges of fission products in aluminium in a "thick target – thick catcher" arrangement. The target consists of a very dilute alloy of ^{239}Pu in aluminium; the catcher of pure aluminium. Therefore a correction for the different scattering of fission products in target and catcher can be neglected. By means of this method the fragment ranges of ^{139}Ba and ^{139}Cs as well as the cumulative ranges of ^{139}Ba , ^{139}Cs and ^{139}Xe were determined. According to our results the fragment ranges R_f within an isobaric chain are different. Their relative values normalized to the isobaric range R_{is} are linearly dependent upon the difference $Z-Z_p$: $R_f/R_{is} = 1.0 - 0.037 (Z-Z_p)$. Using this equation and assuming a constant range dispersion for all members of an isobaric chain, it follows that the dispersion in the kinetic energy of primary fission fragments is about a factor of 0.5 smaller than previous values.

Résumé Une méthode a été développée qui permet de déterminer les parcours des produits de fission dans l'aluminium à l'aide d'un assemblage « cible épaisse – feuille collectrice épaisse »; la cible étant faite d'un alliage fortement dilué de ^{239}Pu par de l'aluminium, la feuille collectrice étant constituée en aluminium pur. C'est pourquoi la correction pour les diffusions différentes des produits de fission dans la cible et dans la feuille collectrice peut être négligée. Par cette méthode les parcours des fragments du ^{139}Ba et du ^{139}Cs aussi bien que les parcours cumulatifs du ^{139}Ba , du ^{139}Cs et du ^{139}Xe ont été déterminés. Nos résultats indiquent que les parcours des fragments sont différents pour une série isobare. Leurs valeurs relatives normalisées au parcours isobare R_{is} , dépendent linéairement de la différence $Z-Z_p$: $R_f/R_{is} = 1,0 - 0,037 (Z-Z_p)$. En supposant que la dispersion du parcours soit constante pour l'ensemble des termes d'une série isobare, il résulte de cette équation que les valeurs trouvées jusqu'ici pour la dispersion de l'énergie cinétique des fragments primaires sont trop grandes par un facteur près de deux.

Einführung

Bei der thermischen Spaltung wird aus dem Targetkern durch Einfang eines Neutrons ein hoch angeregter Zwischenkern gebildet, der sich in zwei Bruchstücke, sogenannte primäre Fragmente aufspaltet. Diese besitzen sowohl eine hohe Anregungsenergie als auch eine große kinetische Energie. Durch die Verdampfung von Neutronen entstehen daraus Fragmente, die zunächst gegen β -Zerfall instabil sind und sich in Spaltprodukte gleicher Nukleonenzahl umwandeln. Diese Spaltprodukte sind häufig ebenfalls instabil gegenüber β -Zerfall, so daß aus dem Fragment schließlich nach einer Reihe von β -Zerfällen ein stabiles Nuklid entsteht. Die Ausbeuten der einzelnen Fragmente sind innerhalb einer solchen isobaren Reihe um die wahrscheinlichste Kernladungszahl Z_p normal verteilt. Außer der Anregungsenergie ist auch die kinetische Energie von Fragment zu Fragment verschieden. Selbst für ein bestimmtes Fragment ist sie nicht diskret, sondern um einen Mittelwert verteilt.

Nach den bisher durchgeführten kernchemischen Untersuchungen beträgt die vom Spaltprozeß herührende Dispersion der kinetischen Energie primärer Fragmente ungefähr 11% [1, 2]. Zur Berechnung dieser Größe wurde vorausgesetzt, daß sowohl die Reichweite und kinetische Energie als auch deren Dispersion für alle Fragmente einer isobaren Reihe konstant sind. Bei Bestimmungen der Reichweite und bei kernchemischen Untersuchungen der kinetischen Energie wurden die Spaltprodukte einer isobaren Reihe, mit Ausnahme der abgeschirmten Nuklide, nur kumulativ erfaßt. Es lagen daher keine experimentellen Befunde vor, die die Annahme einer konstanten Reichweite und Reichweitendispersion rechtfertigen. Erste Hinweise darauf, daß die Reichweiten innerhalb einer isobaren Reihe verschieden sind, gaben die Untersuchungen von NIDAY [3], sowie von BROWN und OLIVER [4]. NIDAY bestimmte die Reichweiten mehrerer Spaltprodukte in Uran. Die Darstellung dieser Werte als Funktion der Nukleonenzahl ergab einen Kurvenverlauf, der mit den Ergebnissen anderer Autoren gut übereinstimmt [5–8]. Die Reichweiten der ausschließlich unabhängig gebildeten abgeschirmten Nuklide ^{86}Rb und ^{136}Cs hingegen waren ungefähr 10% kleiner als es nach diesem Verlauf zu erwarten war. Auch BROWN und OLIVER fanden für ^{136}Cs ein Reichweitendefizit von etwa 10%. Aus den Ergebnissen der Reichweiteuntersuchungen an abgeschirmten Nukliden könnte daher gefolgert werden, daß die Reichweiten verschiedener Fragmente einer isobaren Reihe nicht konstant sind. Möglicherweise hängt das Reichweitendefizit von der Differenz $Z-Z_p$ ab. Um darüber nähere Aufschlüsse zu erhalten, wurde versucht, die Reichweite von Fragmenten einer isobaren Reihe zu bestimmen.

Bestimmung von Fragmentreichweiten

Die Bestimmung der Reichweite von Spaltprodukten kann zum Beispiel nach der „Dünnes Target–dünne Fänger“-Methode erfolgen*. Sie ergibt eine differen-

tielle Reichweiteverteilungskurve, aus der die mittlere Reichweite zu entnehmen ist. Da die Fehler einer Reihe von Schichtdicken in das Ergebnis additiv eingehen, treten hier jedoch relativ große Standardabweichungen auf. Reproduzierbarere Werte erhält man mit Hilfe der „Dickes Target – dicker Fänger“-Methode. Nach der Bestrahlung einer auf beiden Seiten mit dem Fänger abgedeckten Targetfolie bestimmt man die relativen Spaltproduktaktivitäten im Target (A^T) und im Fänger (A^F). Die mittlere Reichweite R folgt aus der Beziehung (in mg Targetmaterial/cm²):

$$R = \frac{A^F}{A^T + A^F} \cdot 2t. \quad (1)$$

Dabei ist t das Flächengewicht des Targets in mg/cm². Für die Berechnung der Reichweite nach dieser Formel müssen folgende Voraussetzungen erfüllt sein:

1. Symmetrische Verteilung der Reichweite um einen Mittelwert. Aus den Ergebnissen differentieller Reichweiteexperimente kann diese Symmetrie als gesichert betrachtet werden [1, 4].
2. Isotropie der Spaltfragmente. Sie ist bei Bestrahlungen mit Reaktor-neutronen wegen deren fehlender Vorzugsrichtung gegeben.
3. Homogener Teilchenfluß im Target. Bei Targetdicken von 5–10 mg/cm² ist die Flußänderung unerheblich.
4. Homogenität des Targets. Sie ist durch sorgfältige Herstellung erreichbar.

Bestehen Target und Fänger aus verschiedenen Materialien, so muß die unterschiedliche Streuung der Spaltprodukte durch eine Korrektur berücksichtigt werden. Sie beträgt nach NIDAY [3] bei der Verwendung von Uran als Target- und von Aluminium als Fängermaterial +3% bis +5%. Um diese Korrektur zu umgehen, wurde die bisher übliche „Dickes Target–dicker Fänger“-Methode modifiziert. Als Targets dienten Folien einer 0,01 bis 0,1%igen Legierung von ^{239}Pu in Aluminium. Die Abbremsseigenschaften einer derart verdünnten Legierung entsprechen praktisch denen des reinen Aluminiums. Ein weiterer Vorteil dieser Technik liegt darin, daß die Reichweiten in

* Die im Zusammenhang mit derartigen Rückstoß-Experimenten verwendeten Ausdrücke „dünn“ oder „dick“ besagen, daß die Dicke des Targets bzw. Fängers (Absorbers) klein oder groß ist gegenüber der Reichweite der Rückstoßkerne in dem betreffenden Material.

1. K. A. PETRZHAK, YU. PETROV und E. A. SHLYAMIN, Soviet Phys. JETP **11**, 1244 (1960).
2. B. L. COHEN, A. F. COHEN und C. D. COLEY, Physic. Rev. **104**, 1046 (1956).
3. J. B. NIDAY, Physic. Rev. **121**, 1471 (1961).
4. F. BROWN und B. H. OLIVER, Canad. J. Chem. **39**, 616 (1961).
5. S. KATCOFF, J. A. MISKEL und C. W. STANLEY, Physic. Rev. **74**, 631 (1948).
6. D. C. BRUNTON und G. C. HANNA, Canad. J. Res. **28A**, 190 (1950).
7. G. N. WALTON, Quart. Revs. (Chem. Soc., London) **15**, 88 (1961).
8. J. C. D. MILTON und J. S. FRASER, Canad. J. Physics **40**, 1626 (1962).

Aluminium bestimmt werden können. Dadurch wird ein unmittelbarer Vergleich der Ergebnisse von Reichweiteuntersuchungen mit unterschiedlichen Targetkernen und von differentiellen Reichweiteexperimenten mit Aluminiumabsorbieren möglich.

Eine Bestimmung der Reichweite von Fragmenten ist generell dann durchführbar, wenn folgende Forderungen erfüllt werden können. Zunächst muß der Anteil des durch β^- -Zerfall gebildeten Nuklids an der Gesamtaktivität klein gegenüber der Fragmentaktivität sein. Das bedeutet, daß die Bestrahlungszeit, die Zeit vom Bestrahlungsende bis zur ersten radiochemischen Trennung und der Zeitbedarf für diese Trennung insgesamt kürzer sind als die Halbwertszeit der Mutter des zu untersuchenden Nuklids. Ferner sollten die Halbwertszeiten und Fragmentausbeuten der einzelnen Glieder der isobaren Reihe mit hinreichender Genauigkeit bekannt sein. Nur dann ist eine Korrektur für die Nachbildung durch β^- -Zerfall möglich. Da diese Voraussetzungen für ^{139}Ba und weitgehend auch für ^{139}Cs zu erfüllen sind, wurden diese beiden Fragmente im Rahmen der vorliegenden Arbeit für eine Reichweitebestimmung ausgewählt. Ein weiterer Grund für die Wahl der isobaren Reihe 139 war es, eine Vergleichsmöglichkeit mit Untersuchungen der Reichweiteverteilung von kumulativ gebildetem ^{140}Ba zu schaffen [4, 9]. In Tab. 1 sind einige charakteristische Daten für die Glieder der isobaren Reihe 139 zusammengestellt.

Tabelle 1. Charakteristische Daten für die Glieder der isobaren Reihe 139 bei der Spaltung von ^{239}Pu mit thermischen Neutronen ($A = 139, Z_p = 54,1$)

Nuklid	^{139}J	^{139}Xe	^{139}Cs	^{139}Ba
$T_{1/2}$	2,7 sec	41 sec	9,5 min	83 min
$Z-Z_p$	-1,1	-0,1	+0,9	+1,9
y_f/y_{is}	0,155	0,570	0,256	0,014
y_c/y_{is}	0,160	0,730	0,986	1,000

Der Wert für Z_p wurde nach CORYELL et al. [10] und WAHL [11] berechnet. Die Berechnung der auf die Isobarenausbeute y_{is} bezogenen Fragmentausbeuten y_f und kumulativen Ausbeuten y_c erfolgte nach WAHL [11] mit der Konstanten $c = 0,95$. Entsprechend der für die Kennzeichnung von Spaltausbeuten verwendeten Terminologie wird im folgenden die Reichweite eines Fragments als Fragmentreichweite R_f , die eines kumulativ gebildeten Spaltprodukts als kumulative Reichweite R_c und die einer isobaren Reihe als Isobarenreichweite R_{is} bezeichnet.

Selbst bei sehr schnellem Arbeiten ist eine Nachbildung durch β^- -Zerfall nicht völlig zu verhindern. Daher liegen nach der ersten radiochemischen Trennung die Fragmentaktivität im Target A_f^T und im Fänger A_f^F , sowie die durch Nachbildung entstandenen Aktivitäten im Target A_n^T und im Fänger A_n^F vor. Die Fragmentreichweiten und kumulativen Reichweiten ergeben sich als Relativwerte nach Gleichung (1) aus den

Beziehungen:

$$\frac{R_f}{R_c} = \frac{A_f^F (A_n^F + A_f^F + A_n^T + A_f^T)}{(A_n^F + A_f^F) (A_f^F + A_f^T)} \quad (2)$$

$$\frac{R_n}{R_c} = \frac{A_n^F (A_n^F + A_f^F + A_n^T + A_f^T)}{(A_n^F + A_f^F) (A_n^F + A_n^T)} \quad (3)$$

Nach Bestimmung der Isobarenreichweite, die im Fall der isobaren Reihe 139 gleich der kumulativen Reichweite des ^{139}Ba zu setzen ist, und einer entsprechenden Umrechnung sind auch die Absolutwerte zu erhalten. In der vorliegenden Arbeit wurden die Fragmentreichweiten und kumulativen Reichweiten des ^{139}Ba und ^{139}Cs , sowie die kumulative Reichweite des ^{139}Xe bestimmt.

Experimentelles

Alle Bestrahlungen erfolgten in der Rohrpostanlage des Reaktors FR 2 des Kernforschungszentrums Karlsruhe bei einem Neutronenfluß von ungefähr $3 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$. Als Targets dienten Folien einer Legierung von ^{239}Pu in Aluminium, deren Flächengewicht 5 bis 8 mg/cm^2 betrug. Zur Herstellung der Pu-Al-Legierung wurde metallisches ^{239}Pu mit Aluminium (99,99 %) unter Vakuum zusammengeschmolzen. Die 10%ige Aus-

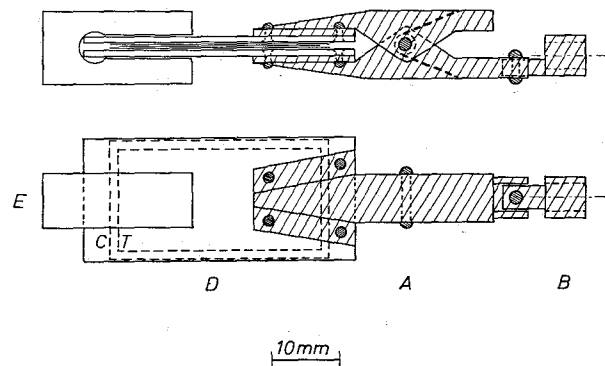


Abb. 1. Targetanordnung

gangslegierung wurde durch weitere Vakuumschmelzen mit Aluminium auf die gewünschte Pu-Konzentration stufenweise verdünnt. Diese betrug bei der Bestimmung der Fragmentreichweite des ^{139}Ba 0,01%, bei der Bestimmung der Isobarenreichweite und der Fragmentreichweite des ^{139}Cs 0,1%. Nach dem Auswalzen und Elektropolieren wurden die Targetfolien unter einer Stahlschablone auf die Abmessungen $15 \times 30 \text{ mm}$ zugeschnitten. Das Flächengewicht ergab sich jeweils aus der Fläche und dem Gewicht der Folie. Die Fänger bestanden aus 0,02 mm starken Aluminiumfolien (99,999% Al) mit den Abmessungen $18 \times 64 \text{ mm}$. Sie waren um die Mitte senkrecht zur Längsachse zusammengefaltet. Den prinzipiellen Aufbau der Targetanordnung zeigt Abb. 1. Die Fänger- und Targetfolien C und T wurden zwischen zwei Aeternamidplatten D durch eine angenietete Aluminiumklammer

9. M. HOLLSTEIN und H. MÜNDEL, Radiochim. Acta 5,195(1966).

10. C. D. CORYELL, M. KAPLAN und R. D. FINK, Canad. J. Chem. 39, 646 (1961).

11. A. C. WAHL, J. Inorg. Chem. 6, 263 (1958).

A fest aufeinander gepreßt. Diese war an ihrem Ende mit dem Gewinde *B* versehen, das zur Befestigung der Anordnung im Deckel der Rohrpostkapsel diente. Zur Verstärkung des Anpreßdruckes war über die Aeternamidplatten eine Klammer *E* aus Aeternamid geschoben.

Die Bestimmung der kumulativen Reichweite des ^{139}Ba erfolgte durch insgesamt zehn Bestrahlungen von je 10 sec Dauer. Ungefähr 1,5 h nach dem Bestrahlungsende wurden die Target- und die Fängerfolie in jeweils 2 ml 30%iger Natronlauge unter Zugabe von 20 mg Ba-Träger gelöst. An eine erste Abtrennung des Ba als BaCO_3 schloß sich ein radiochemischer Ba-Trennungsgang an.

Zur Bestimmung der Fragmentreichweite des ^{139}Ba und der kumulativen Reichweite des ^{139}Cs wurden neun Bestrahlungen von jeweils 10 sec Dauer durchgeführt. 5 bis 10 sec nach dem Bestrahlungsende wurden die Target- und die Fängerfolie voneinander getrennt und gleichzeitig in heißer 30%iger Natronlauge unter Anwesenheit bekannter Mengen Ba- und Cs-Träger, sowie von $0,8 \mu\text{C } ^{137}\text{Cs}$ aufgelöst. Sofort nach dem Auflösen erfolgte eine schnelle Abtrennung des Ba als BaCO_3 . Die Filtration der Niederschläge war ungefähr 40 sec nach dem Bestrahlungsende abgeschlossen. Aus beiden Filtraten wurde 50 min später das inzwischen aus ^{139}Cs nachgebildete ^{139}Ba ebenfalls als Karbonat abgetrennt, und zwar nach Zugabe einer bekannten Menge Ba-Träger. Die Reinigung der insgesamt vier Ba-Fractionen geschah durch radiochemische Trennungsgänge. Bei der Auswertung wurden durch Korrekturen berücksichtigt:

1. Die Nachbildung von ^{139}Ba während der Bestrahlung, in der Zeit vom Bestrahlungsende bis zur ersten Ba-Fällung und im Zeitraum bis zur Abtrennung des nachgebildeten ^{139}Ba aus dem Filtrat. Diese Korrektur erfolgte durch eine Berechnung nach der Bateman-Gleichung für die ersten vier Glieder der isobaren Reihe unter Verwendung der in Tab. 1 angegebenen Werte der Halbwertszeiten und Spaltausbeuten.

2. Das Entweichen von ^{139}Xe beim Lösen der Folien. Der durch Verflüchtigung verlorene Anteil x der zum Zeitpunkt der ersten Trennung vorhandenen ^{139}Xe -Aktivität wurde in zwei zusätzlichen Experimenten durch Auffangen des entweichenden ^{139}Xe ermittelt. Eine Auswertung mit Hilfe der Bateman-Gleichung ergab den Wert $x = 0,38 \pm 0,05$.

3. Die Verschleppung von ^{139}Cs , sowie eventuell von ^{139}J und ^{139}Xe in den Karbonatniederschlag der ersten Trennung. Der ^{139}Cs -Anteil konnte durch eine ^{137}Cs -Bestimmung erfaßt werden.

4. Die Verschleppung von ^{139}Ba in das Filtrat durch unvollständige Ausfällung bei der ersten Trennung. Die Ausbeute dieser Fällung wurde titrimetrisch bestimmt.

Die Bestimmung der Fragmentreichweite des ^{139}Cs und der kumulativen Reichweite des ^{139}Xe erfolgte in acht Experimenten mit einer Bestrahlungsdauer von jeweils 2 sec. Unmittelbar nach der Bestrahlung wurden die Target- und die Fängerfolie in zwei Ausführ-

ungen der in Abb. 2 wiedergegebenen Apparatur gelöst. Diese bestand aus einem Lösegefäß *A*, aus dem das ^{139}Xe mit Hilfe von Helium in den auf 5 Torr evakuierten Kolben *B* ausgetrieben werden konnte. Das Lösegefäß war über die Glasfilterplatte *F* und den Hahn *D2* mit der Treibgaszuführung, über den Hahn *D1* mit dem Tropftrichter *C* verbunden. Tropftrichter und Lösegefäß wurden durch einen Thermostaten beheizt (90°). Vor der Bestrahlung wurden die Tropftrichter mit 10 ml 30%iger Natronlauge gefüllt, die mit je 20 mg Ba- und Cs-Träger, sowie $0,8 \mu\text{C } ^{137}\text{Cs}$ versetzt waren. Die Kolben enthielten je 20 mg Ba- und Cs-Träger. Der Gasdurchfluß wurde auf 2 Liter/

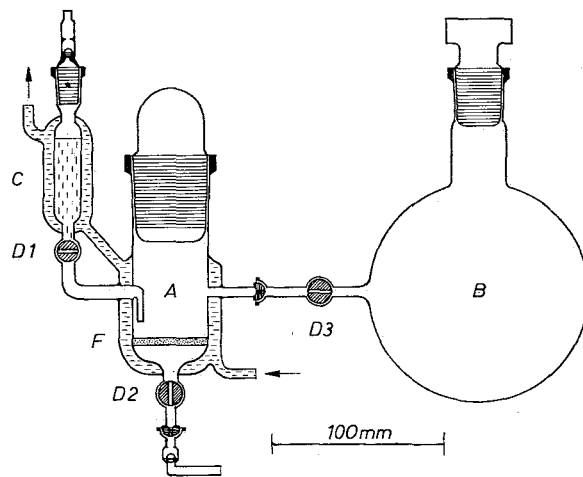


Abb. 2. Apparatur zur schnellen Abtrennung von ^{139}Xe

min eingestellt. Nach Überführung der bestrahlten Target- und Fängerfolie in die Lösegefäße wurden die Schliffstopfen aufgesetzt und die Hähne *D2* und *D3* geöffnet. Die Zugabe der Lösung aus dem Tropftrichter geschah dann durch kurzes Öffnen des Hahnes *D1*. Nach beendeter Auflösung der Folien wurden die Hähne *D2* und *D3* wieder geschlossen. Die Folien waren ungefähr 30 sec nach dem Bestrahlungsende aufgelöst. 60 min später erfolgte aus den Lösungen in den Kolben eine Abtrennung von Ba und Cs, aus den Lösungen in den Lösegefäßen eine Abtrennung von Ba nach radiochemischen Verfahren. Aus den Rückständen in den Tropftrichtern wurde nach Zugabe von 20 mg Träger Cs isoliert, um für die nicht vollständige Überführung der eingesetzten Trägermenge und ^{137}Cs -Aktivität korrigieren zu können. Die für die Berechnung der relativen Reichweiten in Formel (2) und (3) einzusetzenden ^{139}Cs -Aktivitäten wurden aus den durch Nachbildung erhaltenen ^{139}Ba -Aktivitäten berechnet. Dabei war durch Korrekturen zu berücksichtigen:

1. Die Nachbildung von ^{139}Cs bei der Bestrahlung, während der Zeit vom Bestrahlungsende bis zur Xe-Abtrennung und im Zeitraum bis zur Isolierung des nachgebildeten ^{139}Ba , sowie die ^{139}Ba -Fragmentaktivität im Lösegefäß. Die Korrektur erfolgte wie bei der Bestimmung der Fragmentreichweite des ^{139}Ba durch eine Berechnung nach der Bateman-Gleichung.

2. Eine unvollständige Austreibung des ^{139}Xe . Die Ausbeute x dieser Trennung wurde unter gleichen ex-

perimentellen Bedingungen in zwei zusätzlichen Experimenten bestimmt. Die Auswertung mit Hilfe der Bateman-Gleichung ergab den Wert $x = 0,98 \pm 0,05$.

3. Eine Verschleppung von Träger und Aktivität aus dem Lösegefäß in den Kolben durch Verspritzen oder Versprühen beim Lösen der Folien. Sie wurde durch die Anwesenheit der bekannten ¹³⁷Cs-Aktivität beim Lösen markiert.

4. Der Volumenanteil des Kolbens am Gesamtvolumen der Apparatur. Er betrug 93%.

Die radiochemischen Trennungsgänge bestanden im einzelnen aus folgenden Schritten:

Ba: 2 Chloridfällungen, je 1 × Waschen, 2 Eisenhydroxidfällungen, 1 Karbonatfällung, 1 × Waschen, 2 Chloridfällungen, je 1 × Waschen.

Cs: 1 Silicowolframatfällung, 2 × Waschen, 1 Perchloratfällung, 2 × Waschen, 2 Eisenhydroxidfällungen, 1 Perchloratfällung, 3 × Waschen.

Alle Präparate wurden mit Methandurchflußzählern mindestens fünf Halbwertszeiten lang gemessen. Die ¹³⁹Ba-Aktivitäten ergaben sich aus einer Analyse der β -Abfallskurven. Diese Analyse erfolgte mit Hilfe eines speziellen Rechenprogramms [12] in der IBM-Rechenanlage des Kernforschungszentrums Karlsruhe. Bei der Auswertung der Daten wurden die Zeitinkonstanz der Meßanordnung und deren Totzeit, die unterschiedliche Geometrie der verwendeten Probenwechsler-Positionen und die Selbstabsorption berücksichtigt. Die Reinheit des eingesetzten Target- und Fängermaterials wurde durch Aktivierungsanalysen getestet. Dabei zeigte sich, daß die für chemische Ausbeute korrigierten und auf die entsprechenden Bezugszeiten extrapolierten Zählraten der Aktivierungspräparate maximal 20% über der Nullrate lagen.

Ergebnisse und Diskussion

Die aus den experimentellen Daten nach den Formeln (2) und (3) berechneten Werte für R_f/R_c und R_n/R_c wurden auf die relativen Fragmentreichweiten R_f/R_{is} und kumulativen Reichweiten R_c/R_{is} folgendermaßen umgerechnet. Zunächst ergibt eine Erweiterung der Quotienten:

$$\frac{R_f(\text{Cs})}{R_{is}} = \frac{R_f(\text{Cs})}{R_c(\text{Cs})} \cdot \frac{R_c(\text{Cs})}{R_{is}};$$

$$\frac{R_c(\text{Xe})}{R_{is}} = \frac{R_c(\text{Xe})}{R_c(\text{Cs})} \cdot \frac{R_c(\text{Cs})}{R_{is}}.$$

Daraus und mit den innerhalb der Fehlergrenzen gültigen Vereinfachungen

$$R_c(\text{Ba}) = R_{is}, R_c(\text{Cs}) = R_n(\text{Ba}) \quad \text{und} \quad R_c(\text{Xe}) = R_n(\text{Cs})$$

folgt für die relativen Reichweiten der drei Glieder der isobaren Reihe 139:

$$\frac{R_f(\text{Ba})}{R_{is}} = \frac{R_f}{R_c}(\text{Ba}); \quad \frac{R_c(\text{Ba})}{R_{is}} = \frac{R_c}{R_c}(\text{Ba})$$

$$\frac{R_f(\text{Cs})}{R_{is}} = \frac{R_f}{R_c}(\text{Cs}) \cdot \frac{R_n}{R_c}(\text{Ba}); \quad \frac{R_c(\text{Cs})}{R_{is}} = \frac{R_n}{R_c}(\text{Ba})$$

$$\frac{R_c(\text{Xe})}{R_{is}} = \frac{R_n}{R_c}(\text{Cs}) \cdot \frac{R_n}{R_c}(\text{Ba}).$$

Die absoluten Reichweiten erhält man durch Multiplikation dieser Relativwerte mit der gesondert bestimmten kumulativen Reichweite des ¹³⁹Ba $R_c = (2,96 \pm 0,03)$ mg Al/cm², die der Isobarenreichweite R_{is} gleichgesetzt wurde. Aus den Experimenten zur Bestimmung der Fragmentreichweite des ¹³⁹Ba wurde mit Hilfe der Beziehungen

$$A^F = A_n^F + A_f^F \quad \text{und} \quad A^T = A_n^T + A_f^T$$

nach Formel (1) ebenfalls die kumulative Reichweite des ¹³⁹Ba berechnet. Sie beträgt demnach im Mittel $R_c = (2,93 \pm 0,05)$ mg Al/cm². Die Übereinstimmung mit dem Wert $R_c = 2,96$ zeigt, daß die Einzelaktivitäten A_n und A_f in Fänger und Target als zuverlässig gelten können. Durch eine entsprechende Analyse der Abfallskurven war aus den Versuchen zur direkten Bestimmung der kumulativen Reichweite des ¹³⁹Ba auch die kumulative Reichweite des ¹⁴⁰Ba zu erhalten. Ihr Wert beträgt $(2,94 \pm 0,04)$ mg Al/cm² und stimmt mit den aus differentiellen Reichweiteexperimenten stammenden Resultaten gut überein [4, 9]. Wegen der relativ geringen Dicke der Targetfolien (20–30 μ bei einer Gesamtoberfläche von 9 cm²) war in allen Fällen der Kanteneffekt, also ein Verlust von Rückstoßkernen aus den seitlichen Kanten des Targets, zu vernachlässigen.

Tabelle 2. Relativ- und Absolutwerte der Fragmentreichweiten und kumulativen Reichweiten für die isobare Reihe 139

Reichweite	¹³⁹ Ba	¹³⁹ Cs	¹³⁹ Xe
$\frac{R_f}{R_{is}}$	$0,93 \pm 0,01$	$0,97 \pm 0,06$	—
$\frac{R_c}{R_{is}}$	1,00	$1,01 \pm 0,01$	$1,03 \pm 0,03$
R_f (mg Al/cm ²)	$2,75 \pm 0,06$	$2,86 \pm 0,20$	—
R_c (mg Al/cm ²)	$2,96 \pm 0,03$	$2,98 \pm 0,04$	$3,05 \pm 0,09$

In Tab. 2 sind die relativen und absoluten Werte der Fragmentreichweiten und kumulativen Reichweiten für die untersuchten Glieder der isobaren Reihe 139 zusammengestellt. Um den Einfluß einiger in diese Ergebnisse eingehender Unsicherheiten festzustellen, wurde die Berechnung der Quotienten R_f/R_c und R_n/R_c für ¹³⁹Ba mit allen möglichen Kombinationen folgender Varianten durchgeführt:

1. Unsicherheit der berechneten Spaltausbeuten
Variation: $Z_p = 54,1 \pm 0,5$
2. Unsicherheit des experimentell bestimmten ¹³⁹Xe-Verlustes x .
Variation: $x = 0$ bis $x = 1$.
3. Unsicherheit über die Mitfällung bei der ersten Trennung.
Variation: nur ¹³⁷Cs (experimentell bestimmter Anteil) oder alle Glieder der isobaren Reihe werden mitgefällt.

Bei der Berechnung der ¹³⁹Cs-Werte wurde außer der unter 1 genannten Z_p -Variation die experimentell bestimmte Ausbeute x der Xe-Abtrennung innerhalb

der Grenzen $x = 0,95 \pm 0,05$ verändert. Das Ergebnis dieser Berechnungen zeigte, daß selbst bei der ungünstigsten Kombination die angegebenen Fehlergrenzen in beiden Fällen nicht wesentlich überschritten werden.

Der Fehler der Fragmentreichweite des ^{139}Cs ist erheblich größer als die der anderen Reichweiten. Als Ursache dafür ist hauptsächlich die kurze Halbwertszeit des Mutternuklids (^{139}Xe) gegenüber der Zeit bis zur ersten Trennung anzusehen. Um systematische Fehler auszuschalten, die durch unterschiedliche Eigenschaften der beiden für die Abtrennung des ^{139}Xe verwendeten Apparaturen auftreten können, wurde die Fänger- bzw. die Targetfolie von Versuch zu Versuch abwechselnd in einer anderen der Apparaturen gelöst. Ein systematischer Gang der Ergebnisse mit diesem Wechsel war nicht festzustellen.

Nach dem Abschluß dieser Arbeit wurde von WOLFSBERG [13] die Fragmentausbeute des ^{139}Xe bei der Spaltung von ^{239}Pu mit thermischen Neutronen als $y_f/y_{is} = 0,546 \pm 0,008$ und die wahrscheinlichste Ladungszahl der isobaren Reihe 139 als $Z_p = 54,43 \pm 0,02$ angegeben. Diese Werte weichen nur um 4% beziehungsweise 0,6% von den zur Berechnung der einzelnen Reichweiten verwendeten Werten (siehe Tab. 1) ab und liegen innerhalb der Variationsgrenzen.

Die Abhängigkeit der relativen Fragmentreichweiten und kumulativen Reichweiten verschiedener Glieder i der isobaren Reihe 139 von der Differenz $Z_i - Z_p$ zeigt Abb. 3. Außerdem sind zur Ergänzung die Werte der

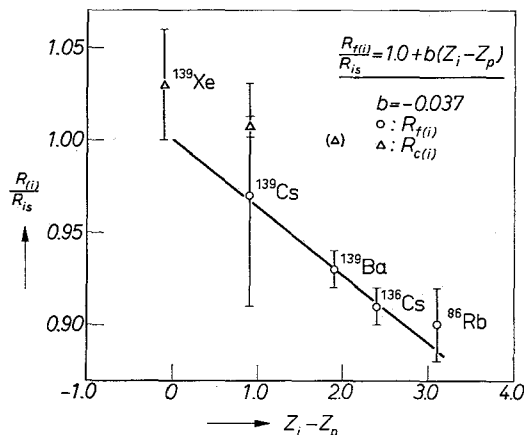


Abb. 3. Relative Fragmentreichweite $R_f(i)/R_{is}$ und kumulative Reichweite $R_c(i)/R_{is}$ des Fragments bzw. Spaltprodukts i als Funktion von $Z_i - Z_p$. Werte für ^{139}Cs und ^{86}Rb nach NIDAY [3], sowie BROWN und OLIVER [4]

relativen Fragmentreichweiten der abgeschirmten Nuklide ^{136}Cs und ^{86}Rb eingetragen. Sie wurden aus den Daten von NIDAY [3], sowie von BROWN und OLIVER [4] berechnet, wobei sich die Fehlergrenzen aus den für die absoluten Fragmentreichweiten angegebenen Fehlern und aus dem Fehler der durch Extrapolation ermittelten Isobarenreichweiten ergaben. Für isobare Reihen im Bereich der Nukleonenzahlen 136–139 läßt sich demnach der Zusammenhang zwischen relativer Fragmentreichweite und $Z_i - Z_p$ durch folgende Ge-

radengleichung beschreiben:

$$\frac{R_f(i)}{R_{is}} = 1,0 + b(Z_i - Z_p). \quad (4)$$

Die Geradenneigung beträgt $b = -0,037$. Die Lage des Wertes für ^{86}Rb deutet darauf hin, daß diese Beziehung auch angenähert für isobare Reihen im Bereich niedrigerer Nukleonenzahlen gilt. Dabei wird die Geradenneigung möglicherweise kleiner.

Die vorliegenden Ergebnisse zeigen, daß die Reichweiten einzelner Fragmente innerhalb einer isobaren Reihe untereinander nicht gleich sind. Daraus folgt, daß eine aus differentiellen Reichweiteexperimenten erhaltene Reichweiteverteilung, d. h. eine Reichweiteverteilung kumulativ gebildeter Spaltprodukte, komplex ist. Sie setzt sich zusammen aus den Reichweiteverteilungen einzelner Fragmente, deren Mittelpunkte nicht mit der Isobarenreichweite zusammenfallen. Die Form einer Fragment-Reichweiteverteilung ist in guter Näherung durch eine Gaußverteilung wiederzugeben [4, 9]. Das Verhältnis der Verteilungsbreiten innerhalb einer isobaren Reihe ist jedoch unbekannt. Bei der folgenden Berechnung, die den Einfluß der unterschiedlichen Fragmentreichweiten auf die Breite der isobaren Reichweiteverteilung aufzeigen soll, wurde daher für alle Fragment-Verteilungen eine konstante Breite der Gaußverteilung angenommen.

Die Normalverteilung der relativen Reichweite R_f/R_{is} des Fragments i um seine mittlere relative Reichweite $R_f(i)/R_{is}$ ist durch folgende Funktion zu beschreiben:

$$I\left(\frac{R_f}{R_{is}}\right) = \frac{F_f(i)}{\sigma_f \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\left(\frac{R_f(i)}{R_{is}} - \frac{R_f}{R_{is}}\right)^2}{2\sigma_f^2}} \quad (5)$$

Dabei bedeutet σ_f die auf die Isobarenreichweite normierte Standardabweichung der Fragment-Reichweiteverteilung. $F_f(i)$ ist der relative Häufigkeitsanteil des Fragments i an der gesamten Isobarenhäufigkeit. Er ergibt sich aus der Ladungsverteilungsfunktion

$$F_f(i) = \frac{y_f(i)}{y_{is}} = \frac{1}{\sigma_z \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(Z_i - Z_p)^2}{2\sigma_z^2}} \quad (6)$$

mit σ_z als Standardabweichung der Ladungsverteilung. Durch Einsetzen der entsprechenden Größen aus den Gleichungen (4) und (6) in die Beziehung (5) folgt:

$$I\left(\frac{R_f}{R_{is}}\right) = \frac{1}{\sigma_f \sigma_z \sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\sigma_z^2 \left[1 - \frac{R_f}{R_{is}} + b(Z_i - Z_p)\right]^2 + \sigma_f^2 (Z_i - Z_p)^2}{2\sigma_f^2 \sigma_z^2}} \quad (7)$$

Setzt man das Maximum der isobaren Reichweiteverteilung gleich dem der Summenkurve aus allen Fragment-Reichweiteverteilungen, so ergibt sich mit

$R_f/R_{is} = 1$ und nach Gleichung (7) der Ausdruck:

$$\frac{1}{\sigma_{is} \sqrt{2\pi}} = \frac{1}{\sigma_f \sigma_z 2\pi} \sum e^{-\frac{b^2 (Z_i - Z_p)^2}{2\sigma_f^2} - \frac{(Z_i - Z_p)^2}{2\sigma_z^2}} \quad (8a)$$

Durch Umformung folgt:

$$\frac{\sigma_f}{\sigma_{is}} = \frac{\sqrt{2\pi}}{2\pi\sigma_z} \sum e^{-0,5 \left(\frac{b^2}{\sigma_f^2} + \frac{1}{\sigma_z^2} \right) (Z_i - Z_p)^2} \quad (8b)$$

Die Standardabweichung σ_{is} der isobaren Reichweiteverteilung ist wie σ_f auf die Isobarenreichweite normiert. In Abb. 4 ist die Abhängigkeit des Quotienten σ_f/σ_{is} von der experimentell zu bestimmenden relativen isobaren Reichweitedispersion $S_{exp} = 2,355 \cdot \sigma_{is}$ nach Gleichung (8b) dargestellt.

Der Verlauf der Kurve macht deutlich, wie die isobare Reichweiteverteilung durch die Superposition der Fragmentreichweiteverteilungen verbreitert wird. Die

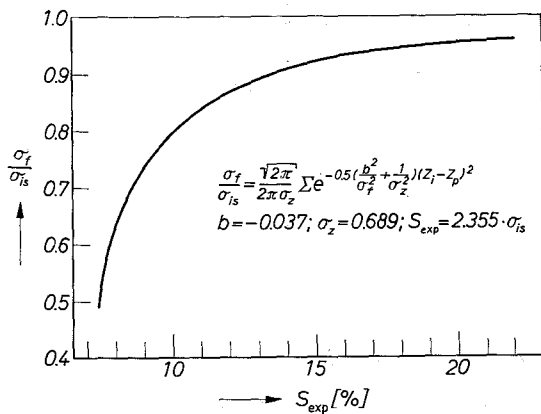


Abb. 4. σ_f/σ_{is} als Funktion der relativen isobaren Reichweitedispersion S_{exp}

Verbreiterung wird durch die isobare Reichweitedispersion bestimmt und ist dem Quotienten σ_f/σ_{is} umgekehrt proportional. Als Beispiel einer derartigen Superposition sind in Abb. 5 die Fragmentreichweite-Verteilungskurven für die isobare Reihe 140 bei der Spaltung von ²³⁹Pu mit thermischen Neutronen dargestellt. Ihr Verlauf wurde nach Gleichung (7) berechnet. Dabei ergab sich σ_f aus der Beziehung (8b) mit $S_{exp} = 0,20$. Die Aufweitung der isobaren Reichweiteverteilung ist bei der Berechnung der Energiedispersion von Fragmenten aus der experimentellen Reichweitedispersion S_{exp} zu berücksichtigen. Bei dieser Berechnung wird S_{exp} zunächst für die Dispersionsanteile korrigiert, die durch Abbremsung der Fragmente im Target (S_T) und durch die Vergrößerung der Weglänge im Kollimator (S_G) entstehen:

$$S_{kor}^2 = (S_{exp} - S_T)^2 - S_G^2 \quad (9a)$$

Um außerdem für die Verbreiterung der isobaren Reichweiteverteilung zu korrigieren, ist diese Beziehung folgendermaßen zu erweitern:

$$S_{kor}^2 = \left(\frac{\sigma_f}{\sigma_{is}} S_{exp} - S_T \right)^2 - S_G^2 \quad (9b)$$

Berechnet man mit Hilfe dieser Gleichung die Energiedispersion von primär gebildetem ¹⁴⁰Ba aus den experimentellen Daten von PETRZHAK et al. [1], so erhält man einen Wert von ungefähr 5% gegenüber dem ohne

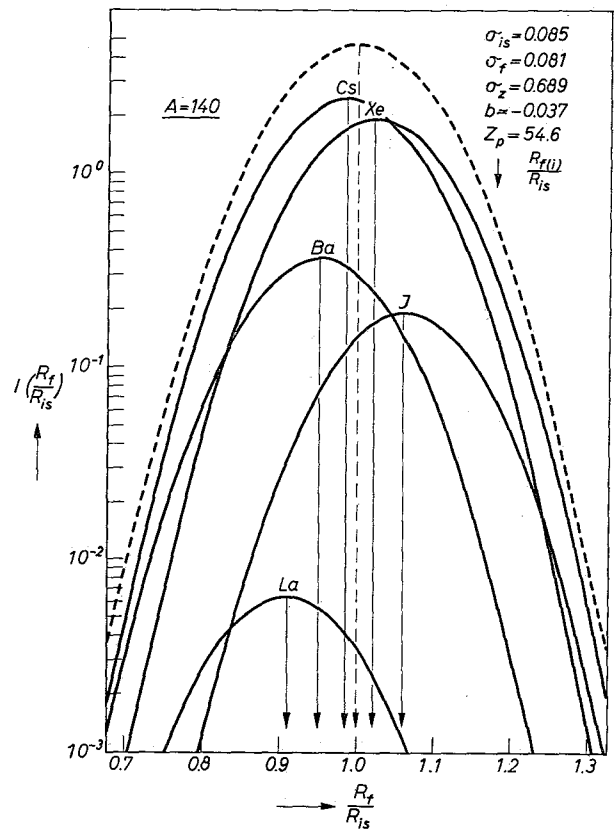


Abb. 5. Reichweiteverteilung innerhalb der isobaren Reihe 140 bei der Spaltung von ²³⁹Pu mit thermischen Neutronen — = Verteilung der Fragmentreichweite; - - - = Verteilung der Isobarenreichweite (als Summenkurve)

Berücksichtigung der Verbreiterung erhaltenen Wert von 11,2%. Bevor aus diesem Vergleich weitere Schlüsse gezogen werden, ist zu betonen, daß die Beziehung (8b) unter der bisher experimentell nicht erwiesenen Annahme abgeleitet wurde, daß die Verteilungsbreiten der Fragmentreichweiten innerhalb einer isobaren Reihe konstant sind. Ferner sollte die Gültigkeit der Gleichung (4) durch weitere Experimente überprüft und gesichert werden. Unter den erwähnten Vorbehalten ist aus den Ergebnissen dieser Arbeit zu folgern, daß der bisher für die vom Spaltprozeß herrührende Dispersion der kinetischen Energie primärer Fragmente berechnete Wert wesentlich zu hoch liegt. Die tatsächliche Energiedispersion dürfte um einen Faktor von ungefähr 0,5 kleiner sein.

Herrn Professor Dr. W. SEELMANN-EGGEBERT möchten wir unseren Dank für die großzügige Förderung dieser Arbeit aussprechen. Wir danken ferner Fr. B. PAULY für ihre Mithilfe bei der Durchführung und Auswertung der Experimente, sowie Herrn O. PULCH und der Betriebsabteilung des FR 2 für die Ausführung der Bestrahlungen.