

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

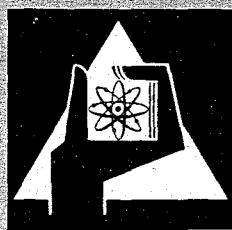
Februar 1967

KFK 519

Institut für Radiochemie

Bestimmung einiger Anregungsfunktionen für
Deuteronenreaktionen mit Pr-141

J. Lange



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Februar 1967

K F K 519

Institut für Radiochemie

Bestimmung einiger Anregungsfunktionen
für Deuteronenreaktionen mit Pr-141

von

Jürgen Lange

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Herrn Professor Dr. W. Seelmann-Eggebert danke ich für die großzügige Unterstützung und Förderung dieser Arbeit.

Herrn Dr. H. Münzel danke ich für viele wertvolle Hinweise und anregende Diskussionen.

Inhalt

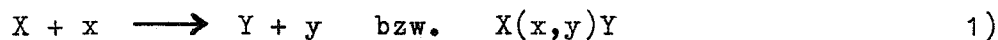
1. Allgemeiner Teil	1
1.1. Einleitung, Ziel dieser Arbeit	1
1.2. Bestimmung von Wirkungsquerschnitten	4
1.2.1. Bestimmung der Reaktionsrate	4
1.2.2. Bestimmung des Teilchenflusses	5
1.2.2.1. Direkte Flußmessung	5
1.2.2.2. Indirekte Flußmessung	5
1.2.3. Bestimmung der Zahl der Targetatome	8
1.2.4. Zusammenfassung	9
1.3. Methode des vermischten Monitors	9
1.3.1. Formen der Target-Monitor-Mischung	9
1.3.2. Vor- und Nachteile der Methode	10
2. Versuchsergebnisse	11
2.1. Anregungsfunktionen für Deuteronenreaktionen mit Pr-141	11
2.1.1. Probleme bei der Bestimmung spezieller Wirkungsquerschnitte	11
2.1.2. Praktische Aufgaben bei der Bestimmung spezieller Wirkungsquerschnitte	15
2.1.2.1. Absoluteichung mit dem 4π -Zähler	16
2.1.2.2. Messungen mit dem geeichten γ -Spektrometer	19
2.1.2.2.1. Auswertung von γ -Messungen	20
2.1.2.2.2. Eichung des γ -Spektrometers	22
2.1.2.3. Messungen mit dem geeichten β -Zähler	26
2.1.2.4. Trennung der Lanthanide durch Ionenaustauschchromatografie	27
2.1.2.4.1. Trennungen mit großen Austauschersäulen	28
2.1.2.4.2. Trennungen mit kleinen Austauschersäulen	29
2.1.2.5. Ausbeutebestimmung	30
2.1.3. Anregungsfunktion für die Reaktion Pr-141(d, β n)Nd-140 ...	31
2.1.3.1. Targets substanz	31
2.1.3.2. Monitorreaktion Al-27(d, α p)Na-24	31
2.1.3.3. Bestrahlungsbedingungen	32
2.1.3.4. Aktivitätsbestimmung von Nd-140	33
2.1.4. Anregungsfunktion für die Reaktion Pr-141(d,p)Pr-142	39
2.1.4.1. Targets substanz, Monitorreaktion und Bestrahlungsbedingungen	39
2.1.4.2. Aktivitätsbestimmung von Pr-142	39

2.1.5.	Anregungsfunktion für die Reaktion Pr-141(d,2n)Nd-141 ...	42
2.1.5.1.	Targetsubstanz	42
2.1.5.2.	Monitorreaktion	42
2.1.5.3.	Bestrahlungsbedingungen	42
2.1.5.4.	Aktivitätsbestimmung von Nd-141	42
2.1.6.	Bildung von Nd-139	47
2.1.7.	Fehlerabschätzung für die gemessenen Wirkungs- querschnitte	49
2.2.	Ausbeuten für die Bestrahlung dicker Targets	52
2.3.	Diskussion der Ergebnisse	54
2.3.1.	Zerfallsdaten	54
2.3.1.1.	Halbwertszeiten für Nd-140, Nd-141 und Pr-142 ..	54
2.3.1.2.	Zerfallseigenschaften eines neuen Nd-139- Isomers	55
2.3.2.	Wirkungsquerschnitte und Anregungsfunktionen	56
2.3.2.1.	Allgemeine Deutung der ermittelten Anregungsfunktionen	56
2.3.2.2.	Die (d,p)-Reaktion	57
2.3.2.3.	Die (d,2n)-Reaktion	58
2.3.2.4.	Die (d,3n)-Reaktion	59
2.3.2.5.	(d,2n)/(d,p)-Wirkungsquerschnittsverhältnisse ..	60
2.3.2.6.	Abschätzung von Wirkungsquerschnitten	60
2.3.3.	Beurteilung der VM-Methode zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten	62
2.4.	Zusammenfassung	62
3.	Experimenteller Teil	64
3.1.	Zyklotronbestrahlungen	64
3.1.1.	Deuteronenquelle	64
3.1.2.	Targetanordnung	64
3.1.3.	Bestrahlungsbedingungen	65
3.1.4.	Bestrahlte Substanzen	65
3.2.	Meßtechnik	66
3.2.1.	Absoluteichung mit dem 4 π -Zähler	66
3.2.2.	Messungen mit dem geeichten γ -Spektrometer	67
3.2.3.	Messungen mit dem geeichten β -Zähler	69
3.3.	Chemische Aufarbeitungen und Trennungen	70
3.3.1.	Ionenaustauschertrennung	70
3.3.2.	Herstellung von Meßpräparaten	72
3.3.3.	Aufschluß von PrAlO ₃	72
3.3.4.	Ausbeutebestimmung	73
3.4.	Chronologische Zusammenstellung der Arbeitsschritte zur Bestimmung von Anregungsfunktionen	73
4.	Literatur	74

1. Allgemeiner Teil

1.1. Einleitung

Ein Weg, zu neuen Erkenntnissen über den Aufbau und die Eigenschaften von Atomkernen zu gelangen, besteht darin, ihre Reaktionswahrscheinlichkeit zu untersuchen. Bei einer Kernreaktion tritt ein Projektil x in Wechselwirkung mit dem Targetkern X unter Emission von freien Nukleonen y und γ -Quanten.



Eine Kernreaktion kann nur dann ablaufen, wenn sie energetisch möglich ist. Die Reaktionsenergie, meist Q -Wert genannt, kann mit Hilfe der Massen aller Reaktionsteilnehmer berechnet werden.

$$Q = \left\{ (m_X + m_x) - (m_Y + m_y) \right\} c^2 \quad 2)$$

In dieser Gleichung bedeuten m die Massen der Reaktionspartner im Grundzustand und c die Lichtgeschwindigkeit. Eine endotherme Kernreaktion ist dann möglich, wenn dem System durch das Projektil mindestens die dem Q -Wert entsprechende Energie zugeführt wird. Ein negativer Q -Wert ist also gleich der Energieschwelle der Reaktion.

Allerdings muß die auf den Compoundkern übertragene kinetische Energie, die nicht für die Anregung des Compoundkerns nutzbar ist, beachtet werden. Unter Berücksichtigung des Impulssatzes beträgt die Schwellenenergie E_S dann:

$$E_S = Q \frac{m_X + m_x}{m_X} \quad 3)$$

In der Praxis finden Reaktionen erst bei Projektilenergien beträchtlich oberhalb der Schwellenenergie statt, da der Produktkern Y im angeregten Zustand anfällt und die Reaktionsprodukte kinetische Energie besitzen.

Für exotherme Reaktionen gibt es naturgemäß keine Energieschwelle, jedoch tritt mit geladenen Projektilen auch bei positivem Q-Wert erst dann eine Reaktion ein, wenn die Energie des Projektils größer ist als die elektrostatische Abstoßung durch den Targetkern. Wird ein geladenes Teilchen emittiert muß es gleichfalls erst den Coulombpotentialwall des Kerns überwinden. Die dafür erforderliche Energieschwelle ergibt sich nach dem Coulombschen Gesetz zu:

$$E_c = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{R_1 + R_2} \quad 4)$$

E_c = Coulombenergie

Z_1, Z_2 = Kernladungszahlen der beteiligten Reaktionspartner

e = Elementarladung

R_1, R_2 = Kernradien der Reaktionspartner

Der Mechanismus einer Reaktion mit Deuteronen kann über drei verschiedene Wege verlaufen:

1. Compoundkernreaktion (1) : Hier wird primär ein hochangeregter Zwischenkern (Compoundkern) gebildet. Nach einer Lebensdauer von etwa 10^{-19} sec, die wesentlich größer ist als die Durchgangszeit des Projektils durch den Targetkern, zerfällt der Zwischenkern unter Emission von Nukleonen und γ -Quanten in den Produktkern Y.
Auf welche Weise der Compoundkern zerfällt, hängt hauptsächlich von seiner Anregungsenergie ab.
2. Oppenheimer-Phillips Reaktion (2) : Wegen der kleinen Bindungsenergie (2,2 MeV) und seiner hantelförmigen Struktur kann das Deuteron bereits im elektrischen Feld des Targetkerns so polarisiert werden, daß nur das Neutron mit dem Kern reagiert, während das Proton den Potentialwall des Kerns nicht überwindet und weiterfliegt. (d,p)-Reaktionen, die bereits bei Deuteronenenergien stattfinden, die unterhalb der Coulombschwelle liegen, verlaufen nach diesem Mechanismus.
3. Stripping-Reaktion (3) : Diese Art der Reaktion ist ebenfalls durch die bereits erwähnten besonderen Eigenschaften des Deuterons bedingt. Sie findet statt mit Deuteronen hoher Energie, die den Targetkern so treffen oder streifen, daß das dem Targetkern nähere Nukleon eingefangen wird, während das andere nahezu ungestört weiterfliegt. Da wegen der

hohen Geschwindigkeit eine Ausrichtung des Deuterons im Kernkraftfeld praktisch nicht stattfindet, treten beim Stripping-Prozeß primäre (d,p)- und (d,n)-Reaktionen etwa gleich häufig auf. Das eingefangene Nukleon bildet mit dem Targetkern einen Compoundkern, der dann zerfällt.

Die bestimmende Größe einer Kernreaktion ist die Wahrscheinlichkeit, mit der die Reaktion unter den gegebenen Bedingungen abläuft. Ein Maß für diese Reaktionswahrscheinlichkeit stellt der Wirkungsquerschnitt dar, dessen Größe von den Eigenschaften der Reaktionspartner sowie deren kinetischer Energie bestimmt wird.

Die Abhängigkeit der Wirkungsquerschnitte von der Projektilenergie bezeichnet man als Anregungsfunktion; sie sind aus verschiedenen Gründen interessant.

Einmal ermöglichen sie es, Aussagen über die Art und den Mechanismus von Kernreaktionen zu machen. Zum Beispiel kann man aus der Anregungsfunktion folgern, ob eine Reaktion über den Zwischenkernmechanismus oder als Direktreaktion abläuft.

Weiterhin sind Anregungsfunktionen wichtig für die Berechnung der Aktivität, die bei einer bestimmten Kernreaktion erzeugt werden kann.

Will man ein Radionuklid herstellen, für das die Anregungsfunktion nicht bekannt ist, so ist es möglich, über Analogiebetrachtungen, die von bekannten Anregungsfunktionen ausgehen, die optimalen Bildungsbedingungen für dieses Nuklid abzuschätzen, z.B. bei der Suche nach neuen kurzlebigen Radionukliden, einem Arbeitsgebiet des Instituts für Radiochemie im Kernforschungszentrum Karlsruhe. Besonders interessierten Untersuchungen an kurzlebigen Neutronenunterschuß-Nukliden der Seltenen Erden, wobei vorwiegend solche Nuklide vorgesehen waren, die durch Kernreaktionen mit Sm-144 und Nd-142 hergestellt werden können. Beide Ausgangskerne besitzen eine abgeschlossene Neutronenschale und sind daher neutronenmagisch. Es war sinnvoll, für Analogiebetrachtungen von Anregungsfunktionen ebenfalls neutronenmagischer Seltener Erden auszugehen. Pr-141 schien hierfür geeignet, da es dieselbe magische Neutronenzahl besitzt und außerdem als Reinnuklid vorkommt.

Ein weiteres Ziel dieser Arbeit war es, eine neue Technik zur Ermittlung von Wirkungsquerschnitten zu erproben. Diese Aufgabe steht im Zusammenhang mit der von der Gruppe Kernchemie geplanten Untersuchung von Wir-

kungsquerschnitten für die Spaltung schwerer Atomkerne. Bei den üblichen Techniken ergeben sich Schwierigkeiten, vor allem bei der Herstellung dünner, uniformer Targetschichten, die möglicherweise mit der neuen Technik vermieden werden können.

1.2. Bestimmung von Wirkungsquerschnitten

Der Wirkungsquerschnitt σ steht mit der Reaktionsrate in folgendem Zusammenhang:

$$R = \sigma N \phi \quad 5)$$

Es bedeuten:

R = Reaktionsrate (Zahl der Reaktionen pro sec)

σ = Wirkungsquerschnitt (cm^2)

N = Zahl der Targetatome, die dem Teilchenstrom dargeboten werden

ϕ = Strom der Projektile ($\text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$)

Die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten läuft nach Gleichung 5) darauf hinaus, die drei Unbekannten R, N und ϕ zu ermitteln.

1.2.1. Bestimmung der Reaktionsrate

Ist das Reaktionsprodukt radioaktiv, so wird die Reaktionsrate dadurch ermittelt, daß man dessen Zerfallsrate bestimmt. Dafür ist Gleichung 5) mit dem "Sättigungsfaktor" zu multiplizieren:

$$A_Y = \sigma N \phi (1 - e^{-\lambda t}) \quad 6)$$

A_Y = absolute Aktivität von Y bei Bestrahlungsende (Zerfälle/sec)

λ = Zerfallskonstante der Kerne Y ($= \frac{\ln 2}{T}$)

T = Halbwertszeit von Y

t = Bestrahlungsdauer

Für die Ermittlung der Reaktionsrate ist in diesem Fall die Bestimmung der Zerfallsrate des Reaktionsproduktes und die Kenntnis seiner Halbwertszeit erforderlich.

1.2.2. Bestimmung des Teilchenflusses

1.2.2.1. Direkte Flußmessung

Man kann den Teilchenfluß dadurch bestimmen, daß man die von den Projektilen mitgeführte Ladung mißt. Dabei ist es wichtig, daß die gesamte Ladung gesammelt wird. Beim Auftreffen der energiereichen Deuteronen auf das Target werden jedoch Elektronen freigemacht, von denen ein Teil das Target verlassen kann. Das führt zu einer Erhöhung der Ladung und damit zu einer Verfälschung der Strommessung. Im allgemeinen verhindert man solche Störungen dadurch, daß man das Target mit einem Faraday-Käfig umgibt, durch den die emittierten Elektronen aufgefangen werden.

Bei der Art der Zyklotronbestrahlungen war ein solches Verfahren der Strommessung nicht anwendbar, da das Innentarget nicht mit einem Faraday-Käfig umgeben werden konnte. Es blieb daher nur die Möglichkeit, den Teilchenfluß indirekt zu ermitteln.

1.2.2.2. Indirekte Flußmessung

Die indirekte Flußmessung erfolgt in der Weise, daß man zusammen mit der Substanz, deren Wirkungsquerschnitt bestimmt werden soll, eine Monitorsubstanz bestrahlt. Die in dieser erzeugte Aktivität wird zur Berechnung des Teilchenflusses herangezogen. Voraussetzung für die Anwendung der Monitormethode ist, daß die Anregungsfunktion für die Monitorreaktion in dem Bereich bekannt ist, in dem Wirkungsquerschnitte anderer Reaktionen gemessen werden sollen.

Bei der üblichen Methode der Monitoranwendung durchsetzt der Projektilstrahl nacheinander die getrennten Schichten der Target- und der Monitorsubstanzen. Dafür muß vorausgesetzt werden, daß die Targetschicht so dünn ist, daß der durchgehende Teilchenfluß nicht merklich geschwächt wird.

Bezeichnet man mit R' , N' und ϕ' die für eine differentielle Targetfläche (Abbildung 1) geltenden Größen, so ist für diese Fläche ebenfalls Gleichung 5) anwendbar:

$$R' = \sigma N' \phi' \quad 5a)$$

R , N und ϕ sind dann als Mittelwerte aller für die differentiiellen Targetflächen geltenden Größen R' , N' und ϕ' aufzufassen.

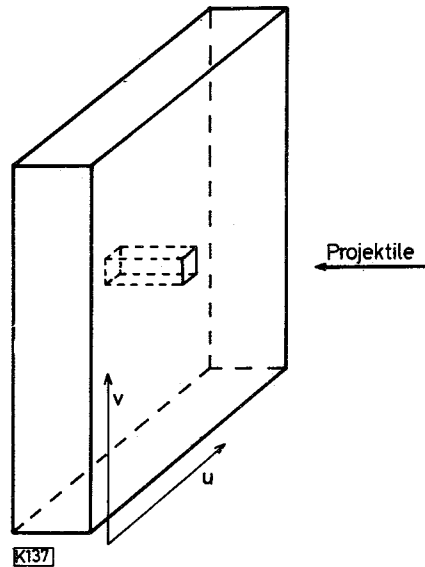


Abb. 1

Das Verhältnis der Reaktionsraten für die Target- und Monitorsubstanz ist für eine differentielle Reaktionsfläche nach Gleichung 5a) gegeben durch:

$$\frac{R'}{R'_M} = \frac{\sigma N' \phi'}{\sigma_M N'_M \phi'_M} \quad 7)$$

Index M = Monitorsubstanz

Für identische Flächenelemente ist $\phi' = \phi'_M$

Für die gesamte Reaktionsfläche müssen die Reaktionsraten für die einzelnen differentiellen Flächen über beide Flächenkoordinaten u und v summiert werden (siehe Abbildung 1).

$$\frac{\sum_u \sum_v R'}{\sum_u \sum_v R'_M} = \frac{\sigma \sum_u \sum_v N' \phi'}{\sigma_M \sum_u \sum_v N'_M \phi'_M} \quad 8)$$

Gleichung 8) gilt für den allgemeinen Fall, daß sowohl ϕ' als auch N' sich ändern. Man erkennt, daß das Produkt $N' \phi'$ für jedes einzelne Flächenelement der Target- und Monitorsubstanz bekannt sein muß, um R zu erhalten. In der Praxis ist diese Forderung nur unter bestimmten Voraussetzungen zu realisieren.

Ist ϕ' über die gesamte Reaktionsfläche konstant, so vereinfacht sich Gleichung 8):

$$\frac{\sum_u \sum_v R'}{\sum_u \sum_v R'_M} = \frac{\sigma \phi \sum_u \sum_v N'}{\sigma_M \phi_M \sum_u \sum_v N'_M} = \frac{\sigma N}{\sigma_M N_M} \quad (\phi = \phi_M) \quad 9)$$

Da N dem Flächengewicht proportional ist,

$$N = \frac{d F}{G} N_L \quad 10)$$

d = Flächengewicht ($\frac{g}{cm^2}$)

F = Reaktionsfläche = vom Teilchenstrom durchsetzte Fläche (cm^2)

G = Atomgewicht

N_L = Loschmidtsche Zahl

genügt in diesem Fall die Kenntnis der mittleren Flächengewichte von Target- und Monitorschicht.

Ist ϕ' nicht konstant, so müssen N' und N'_M konstant sein, damit σ bestimmt werden kann:

$$\frac{\sum_u \sum_v R'}{\sum_u \sum_v R'_M} = \frac{\sigma N \sum_u \sum_v \phi'}{\sigma_M N_M \sum_u \sum_v \phi'_M} = \frac{\sigma N}{\sigma_M N_M} \quad 11)$$

$$\left(\sum_u \sum_v \phi' = \sum_u \sum_v \phi'_M \right)$$

Diese Forderung kann auf zwei Wegen erfüllt werden:

1. Verwendet man getrennte Target- und Monitorschichten, so müssen gemäß Gleichung 10) die Schichtdicken für beide Substanzen über die gesamte Reaktionsfläche konstant sein. Man erhält den unbekanntem Wirkungsquerschnitt unter gleichzeitiger Anwendung von Gleichung 6) und Gleichung 10) für die Target- und Monitorsubstanz

$$\sigma = \frac{A \sigma_M d_M G (1 - e^{-\lambda_M t})}{A_M d G_M (1 - e^{-\lambda t})} \quad 12)$$

2. Die andere Möglichkeit geht davon aus, daß die Target- und Monitor-substanz nicht getrennt, sondern in homogener Mischung dem Teilchenstrahl dargeboten wird. Aus der Forderung, daß N und N_M sowie das Verhältnis N/N_M einen konstanten Wert haben soll, folgt für den Fall der Mischung, daß das Mol- bzw. Atomverhältnis von Target- und Monitor konstant sein muß. Berücksichtigt man, daß

$$N = \frac{m}{G} N_L = n N_L \quad 13)$$

m = Gewicht (g)

n = Zahl der g-Atome bzw. Molzahl

ist, so erhält man wieder unter Anwendung von Gleichung 6) folgende Beziehung für den Wirkungsquerschnitt:

$$\sigma = \frac{A \sigma_M n_M (1 - e^{-\lambda_M t})}{A_M n (1 - e^{-\lambda t})} \quad 14)$$

Da ϕ' des zur Verfügung stehenden Deuteronenstrahls nicht konstant, sondern ortsabhängig war, brauchten von den aufgezählten Möglichkeiten nur die von Gleichung 11) abgeleiteten näher betrachtet zu werden. Die Prüfung beider Monitorverfahren zeigte, daß die Methode des mit der Targetsubstanz gemischten Monitors^{*)} Vorteile aufweist. Dieses Verfahren wurde daher für die Untersuchungen dieser Arbeit verwendet.

1.2.3. Bestimmung der Zahl der Targetatome

Die Zahl der dem Strahl dargebotenen Atome kann durch Wägung ermittelt werden. Man geht dabei von der in Gleichung 13) wiedergegebenen Proportionalität zwischen m und N aus. Ist die Targetsubstanz als uniforme Schicht angeordnet, so kann nach Gleichung 10) N auch durch das Flächen-gewicht bestimmt werden. Wendet man, wie in dieser Arbeit, die Methode des vermischten Monitors an, so braucht N selbst nicht, sondern nur das Verhältnis n_M/n bestimmt zu werden.

^{*)} Im folgenden wird dieses Verfahren als "Methode des vermischten Monitors" oder "VM-Methode" bezeichnet.

1.2.4. Zusammenfassung

Die bisherigen Betrachtungen zeigen, daß sich für die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten im Rahmen dieser Arbeit folgender Weg am besten eignet:

Die Reaktionsraten werden durch Bestimmung der Zerfallsraten des jeweiligen Produktes gemessen. Wegen der Notwendigkeit, im Innern des Zyklotrons zu bestrahlen, werden Fluß und Zahl der Targetatome kombiniert bestimmt durch die Monitormethode. Da die Herstellung uniformer Targetschichten auf Schwierigkeiten stieß, wird von dem Verfahren des vermischten Monitors Gebrauch gemacht. Diese Methode unter Verwendung einer chemischen Verbindung zwischen Target- und Monitoratomen zu erproben ist ein Ziel dieser Arbeit.

1.3. Methode des vermischten Monitors

1.3.1. Formen der Target-Monitor-Mischung^{*)}

Für die praktische Anwendung der Methode des vermischten Monitors sind drei verschiedene Formen der TM-Substanz denkbar.

1. Chemische Verbindung stöchiometrischer Zusammensetzung: Hier sind die beiden Forderungen nach konstantem und definiertem Mischungsverhältnis ideal erfüllt.
2. Mechanisches Gemisch: Im Gegensatz zur chemischen Verbindung liegt bei einem mechanischen Gemisch keine sich bis in den atomaren Bereich erstreckende ideale Mischung vor. In der Regel nimmt die Homogenität der Mischung mit Verminderung der Korngröße beider Partner zu. Bei dem mechanischen Gemisch ist zu beachten, daß eine gute Mischung schwer herzustellen ist, und daß bereits durch mechanische Einwirkung wieder eine partielle Entmischung stattfinden kann, besonders dann, wenn sich die spezifischen Gewichte der Substanzen stark unterscheiden.
3. Targetsubstanz = Monitorsubstanz: Dies ist eine spezielle Variante der Methode des vermischten Monitors, bei der alle von der TM-Substanz geforderten Eigenschaften ideal erfüllt sind. Ist die Anregungsfunktion für eines der Reaktionsprodukte bekannt, so kann dieses dazu dienen, die Anregungsfunktion für ein anderes Reaktionsprodukt zu ermitteln.

^{*)} Für den Begriff "Target-Monitor" wird im folgenden auch die abgekürzte Bezeichnung "TM" verwendet.

1.3.2. Vor- und Nachteile der Methode

Die bei der üblichen Methode der Monitoranwendung aufgestellte Forderung, daß Target- und Monitorsubstanz in uniformen Schichten definierter Dicke angeordnet sein müssen, gilt für die VM-Methode nicht. Das kann deshalb von großem Vorteil sein, weil gerade die Erfüllung dieser Forderung häufig erhebliche experimentelle Schwierigkeiten bereitet. Die Tatsache, daß auch heute noch zahlreiche Veröffentlichungen (4), Seminare und Konferenzen (5) sich mit den Problemen der Herstellung definierter Targetschichten aus den verschiedensten Substanzen befassen, zeigt, daß die damit verbundenen Schwierigkeiten keineswegs überwunden sind.

Anstelle der uniformen Substanzschichten wird eine TM-Mischung definierter und stabiler Zusammensetzung gefordert. Die definierte Zusammensetzung kann durch Herstellung einer chemischen Verbindung zwischen Monitor- und Targetschicht erreicht werden. Somit ist diese Forderung durch Wahl geeigneter präparativer Methoden in der Regel zu erfüllen. Dabei ist von Vorteil, daß die TM-Substanz normalerweise in für alle Bestrahlungen ausreichender Menge in einem Arbeitsgang hergestellt werden kann.

Die TM-Substanz soll so stabil sein, daß unter den Bestrahlungsbedingungen keine Entmischung auftritt. Solche Entmischungen sind sowohl für chemische Verbindungen als auch mechanische Gemische durch thermische Effekte, z.B. Zersetzung, Destillation und Sublimation von Bestandteilen, Schmelzen u.a. denkbar.

Ein nicht übersehbarer Nachteil des Verfahrens resultiert aus der Grundforderung der Methode, der Vermischung von Target- und Monitorsubstanz. Diese Forderung bedingt, daß die interessierenden Reaktionsprodukte stets ebenfalls gemischt vorliegen und damit in der Regel vor der Messung chemisch voneinander getrennt werden müssen. Hiervon ausgenommen sind nur solche Gemische, bei denen beide Reaktionsprodukte durch eine geeignete Meßtechnik quantitativ nebeneinander bestimmt werden können.

Das Verfahren des vermischten Monitors ist bisher nur selten angewandt worden. Die Zahl der Veröffentlichungen, in denen diese Monitormethode verwendet wird, ist gering im Vergleich zu den Arbeiten, in denen uniforme Monitorschichten benutzt werden. Als Beispiel für die Anwendung des vermischten Monitors sei auf Arbeiten hingewiesen, in denen mechanische TM-Gemische mit Kupfer (6), Kupferoxid (7) und Lithiumoxid (8) bzw. isotope Nuklide (6) als Monitor dienen.

2. Versuchsergebnisse

2.1. Anregungsfunktionen für Deuteronenreaktionen mit Pr-141

2.1.1. Probleme bei der Bestimmung spezieller Wirkungsquerschnitte

Wird Pr-141 mit Deuteronen bestrahlt, so entstehen verschiedene Reaktionsprodukte, die den Elementen Nd, Pr, Ce und La angehören.

					Nd 139? 5,5 h K β ⁺ 3,1 γ 1,3	Nd 140 3,3 d K γ 0,11-0,5	Nd 141 64 s 2,5 h J: 0,76 K β ⁺ 0,78 γ 0,04; 0,42; 1,14;...	Nd 142. 27,11 σ 18	Nd 143 12,17 σ 240
	Pr 134 ~ 40 m γ ~ 0,72	Pr 135 22 m β ⁺ 2,5 γ 0,08; 0,22; 0,30	Pr 136 70 m K β ⁺ 2,0 γ 0,17; 0,8; 1,1	Pr 137 1,5 h K β ⁺ 1,8 kein γ	Pr 138 2,0 h K β ⁺ 1,4 γ 0,8; 0,30-1,7	Pr 139 4,5 h K β ⁺ 1,0 γ 1,3; 1,6; ...	Pr 140 3,4 m K β ⁺ 2,37; ... γ 1,60; 0,90; ...	Pr 141 100 σ 10,8	Pr 142 19,1 h β ⁺ 2,15; 0,58 γ 1,57 σ 18
Ce 132 4,2 h β ⁺	Ce 133 6,3 h K β ⁺ 1,3 γ 1,8	Ce 134 72 h K kein γ	Ce 135 22 h K β ⁺ ...	Ce 136 0,193 σ 0,6 + 6,3	Ce 137 34,5 h 8,7 h J: 0,255 K kein β ⁺ e ⁻ γ 0,01; 0,45;	Ce 138 9,2 ms 0,250 J: 0,30; 0,80; 1,04 σ 0,007 - 0,6	Ce 139 60 s 140 d J: 0,75 K 0,10 kein β ⁺ γ 0,17	Ce 140 88,48 σ 0,31	Ce 141 32,5 d β ⁺ 0,44; 0,58 γ 0,15
La 131 61 m K β ⁺ 1,42; 1,94; ... γ 0,12; 0,36; 0,42; 0,28; ...	La 132 4,5 h β ⁺ 3,8 γ 1,0	La 133 4,0 h K β ⁺ 1,2 γ 0,8	La 134 6,5 m K β ⁺ 2,7; 2,1 γ 0,61	La 135 19,8 h K β ⁺ ... γ 0,48; ...	La 136 9,5 m K β ⁺ 1,85; ... γ 0,83	La 137 6 · 10 ⁴ a K kein γ	La 138 0,089 1,1 · 10 ¹¹ a K kein β ⁺ β ⁻ 0,21 γ 1,43; 0,81	La 139 99,911 σ 8,2	La 140 40,2 h β ⁻ 1,38; 1,10; 0,83; ... γ 1,60; 0,49; 0,32; 0,82; ...

Abb. 2 Bereich der Reaktionsprodukte, die durch Deuteronenreaktionen mit Pr-141 entstehen können (9).

Abbildung 2 gibt einen Überblick über den in Betracht kommenden Bereich. Welche Nuklide im einzelnen zu erwarten sind, kann durch die in Abschnitt 1.1. dargestellten energetischen Betrachtungen abgeschätzt werden. Dazu ist die Kenntnis der Q-Werte und der Coulombenergien erforderlich. Die nach Gleichung 4) ermittelten Coulombenergien betragen für das Eindringen eines Deuterons in den Pr-141-Kern und das Auslaufen eines Protons aus dem Nd-143-Compoundkern ca. 9,5 MeV, während für die Emission eines α-Teilchens etwa 18 MeV anzusetzen sind. Die nach Gleichung 2) errechneten Q-Werte sind für einige Deuteronenreaktionen in Tabelle 1 dargestellt worden.

Tabelle 1 Q-Werte für Deuteronenreaktionen mit Pr-141

Reaktion	Q-Wert (MeV)	berechnet nach
Pr-141 (d,2n)Nd-141	- 4,81	(10)
(d,3n)Nd-140	- 12,69	(10)
(d,4n)Nd-139	- 22,86	(10)
(d,5n)Nd-138	- 33,22	(11)
(d,6n)Nd-137	- 44,34	(11)
(d,p)Pr-142	+ 3,63	(10)
(d,p2n)Pr-140	- 11,61	(10)
(d,p3n)Pr-139	- 19,28	(10)
(d,p4n)Pr-138	- 29,11	(10)
(d,p5n)Pr-137	- 37,08	(10)
(d,p6n)Pr-136	- 49,81	(11)
(d, α)Ce-139	+ 11,80	(10)
(d, α 2n)Ce-137	- 5,18	(10)
(d, α 4n)Ce-135	- 23,02	(10)
(d, α 5n)Ce-134	- 30,78	(10)
(d, α 6n)Ce-133	- 41,12	(10)
(d, α 7n)Ce-132	- 49,50	(10)

Verwendet man zur Flußmessung das Verfahren des vermischten Monitors, bei dem sich Target- und Monitornuklid unterscheiden, so sind zusätzlich die aus der Monitorsubstanz gebildeten Reaktionsprodukte anwesend.

In die Überlegungen, ob für ein bestimmtes Reaktionsprodukt die Anregungsfunktion gemessen werden kann, sind folgende Punkte einzubeziehen:

1. Energiebereich, in dem das Nuklid entstehen kann
2. Bildungsart (Bildung nur durch Kernreaktion oder zusätzlich auch durch β -Zerfall eines isobaren Produktkernes)
3. Halbwertszeit
4. zur quantitativen Messung geeignete Strahlung
5. chemische Trennung

Als Grundlage der Überlegungen dienen die in Tabelle 2 zusammengestellten Daten der zu erwartenden Nd- Pr- und Ce-Nuklide.

Tabelle 2 Zerfallsdaten einiger Reaktionsprodukte

Nuklid	Halbwertszeit	EC %	%	β^+ MeV	Lit.	γ - Strahlung (MeV) *	
						0	0.5 1.0 1.5 2.0 2.5
Nd-141	2,62 h	96,2	3,8	0,79	12	0,3	2,5 1,5
Nd-140	3,3 d	100	--		13		
Nd-139 ^m	5,5 h				14,15,16		
Nd-138	ca.5 h				16		
Nd-137	55 min			ca.3	17		
Pr-142	19,2 h		β^- 96 4	2,15 0,58	18		4
Pr-140	3,4 min	50	50	2,32	19	(26)	(100) (25)
Pr-139	4,92 h	89,1	10,9	1,09	20	0,26	0,59 0,35
Pr-138	2,2 h	≥ 21	≤ 79	1,65 1,55	21	(77)(9)(5)	(100) (98)(0,9) (0,4)
Pr-137	1,5 h	73	27	1,7	22		
Pr-136	1 h			2,0	23		
Ce-139	140 d	100	--		24	100	

* Die Zahlen geben die Häufigkeit des γ -Überganges in % an. In Klammern gesetzte Zahlen bedeuten relative γ -Intensitäten.

Zu 1. Eine Übersicht über die Energiebereiche, in denen die verschiedenen Nd- und Pr-Nuklide gebildet werden können, vermittelt Abbildung 3. Aus ihr ist zu ersehen, daß die Zahl der verschiedenen Reaktionsprodukte mit steigender Projektilenergie zunimmt.

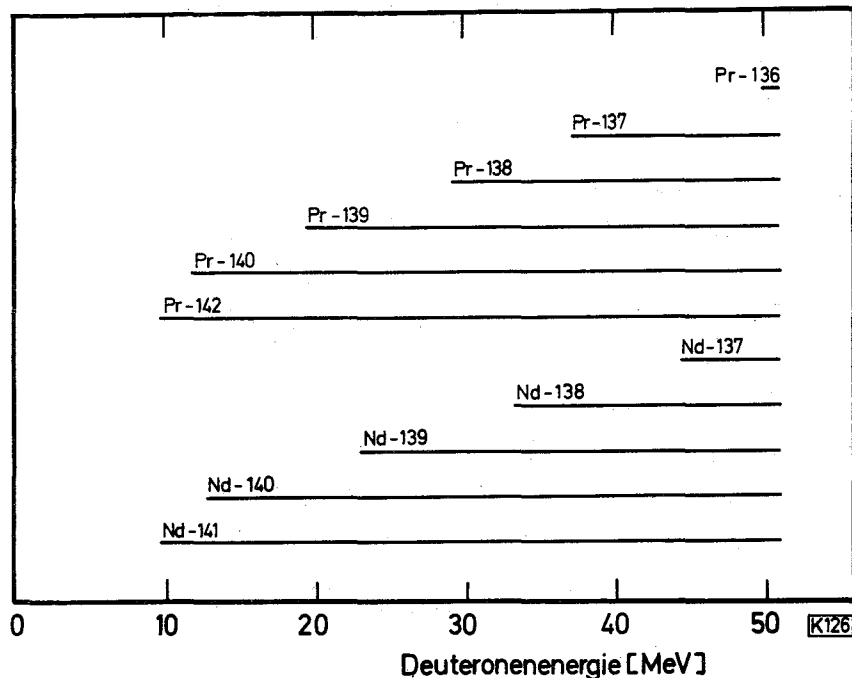


Abb. 3 Energiebereich für die Bildung einiger Reaktionsprodukte

Zu 2. Während alle Nd-Isotope nur durch (d,xn)-Reaktionen entstehen können, werden die Pr- und Ce-Nuklide mit Ausnahme von Pr-142 auf zwei Wegen gebildet:

1. durch (d,pxn)- bzw. (d,αxn)-Reaktion
2. durch den Zerfall der jeweiligen isobaren Kerne

Für Pr-Nuklide mit kleineren Massenzahlen als 141 können Wirkungsquerschnitte nur dann bestimmt werden, wenn der Anteil, der durch den Zerfall des isobaren Nd geliefert wird, bekannt ist bzw. experimentell bestimmt werden kann. Bei Ce können die gewünschten Nuklide außer durch Kernreaktionen auch noch durch den Zerfall der Nd- und Pr-Isobare gebildet werden.

Zu 3. Die Halbwertszeiten der in Frage kommenden Nd- und Pr-Nuklide unterscheiden sich zum Teil beträchtlich. Es sollte daher möglich sein, nach geeigneten Wartezeiten die langlebigen Nuklide ungestört von kurzlebigen Aktivitäten zu messen.

Zu 4. Mit Ausnahme von Pr-142 entstehen bei den betrachteten Deuteronenreaktionen Nuklide mit Neutronenunterschuss, die durch Elektroneneinfang und Positronenemission unter gleichzeitiger Aussendung von γ -Strahlung zerfallen.

Für die Aktivitätsbestimmung stehen folgende Meßgeräte zur Verfügung:

1. Methandurchflußzähler zur Messung von β^- - oder β^+ -Strahlung
2. γ -Spektrometer mit NaJ(Tl)-Szintillationssonde zur Messung der γ -Strahlung sowie der 0,51 MeV Vernichtungsstrahlung der Positronenstrahler

Verwendet man den β -Zähler, so ist zu berücksichtigen, daß dieser zu einem Teil auch auf die beim Elektroneneinfang gebildeten Augerelektronen und Röntgenstrahlen anspricht.

Zu 5. Zur Vereinfachung der Meßbedingungen ist es günstig und zum Teil sogar nötig, vor der Messung die bei den Kernreaktionen gebildeten verschiedenen Elemente voneinander zu trennen. Für die Gruppe der Lanthanide ist dafür das Verfahren der Ionenaustauschertrennung am besten geeignet.

Unter Berücksichtigung der aufgeführten Punkte ergab sich, daß es möglich sein sollte, Anregungsfunktionen für die Reaktionen Pr-141(d,3n), Pr-141(d,2n) und Pr-141(d,p) zu bestimmen.

2.1.2. Praktische Aufgaben bei der Bestimmung spezieller Wirkungsquerschnitte

Zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten waren einige praktische Voraussetzungen zu erfüllen:

1. Absoluteichung
2. Chemische Trennung
3. Ausbeutebestimmung

Wie dabei im einzelnen vorgegangen wurde, wird im folgenden beschrieben.

2.1.2.1. Absoluteichung mit dem 4π -Zähler

Ein Teil der für die Eichung von Meßgeräten benutzten Aktivitäten (Cs-137, Pr-142 und Na-24) wurde mit dem 4π -Zähler absolutgeeicht.

Für die Zählordnung geht man von der Voraussetzung aus, daß der Wirkungsgrad für β -Strahler 100 % beträgt und damit die Meßrate der Zerfallsrate gleicht.*) In der Praxis können jedoch Störungen dieser Identitätsbeziehung auftreten, die bedingt sind:

1. durch die Zerfallseigenschaften des Radionuklides

Zerfällt z.B. ein Radionuklid unter Bildung eines radioaktiven Tochterproduktes, so ist dessen Aktivität zu beachten.

2. durch die Meßbedingungen

z.B. durch Folien und Selbstabsorption, Totzeit u.a.

In solchen Fällen gelangt man nur dann zu richtigen Eichwerten, wenn die Abweichungen korrigiert werden. Diese Korrekturen können entweder (für 1.) aus den Zerfallsdaten abgeleitet oder (für 2.) empirisch gewonnen werden.

Zur Herstellung der Meßpräparate wurde von wässrigen Lösungen der zu eichenden Nuklide ausgegangen, deren spezifische Aktivität etwa 1 μCi pro g Lösung betrug. Die Aktivitäten waren als Spaltprodukte (Cs-137) oder durch Neutronenaktivierung im Reaktor (Pr-142, Na-24) gewonnen worden.

Um Störungen durch Adsorption z.B. an Wandungen und feinsten Schwebeteilchen zu vermeiden, wurden den Lösungen Träger zugesetzt. Wie eigene Untersuchungen (25) zeigten, reicht dafür eine Trägerkonzentration von etwa 20 $\mu\text{g/g}$ Lösung aus. Von der Eichlösung wurde eine definierte Menge auf einen Präparatsträger mit einer sehr dünnen, einseitig goldbedampften Kunststoffolie gegeben und vorsichtig zur Trockene eingedunstet. Geeignete Folien wurden nach einem im KFK verwendeten Verfahren (26) hergestellt. Die quantitative Bestimmung der aufgetragenen Eichlösung erfolgte gravimetrisch. Der absolute Wägefehler wurde auf höchstens $\pm 10 \mu\text{g}$ abgeschätzt.

Die experimentell ermittelten Zählraten wurden korrigiert für Nulleffekt, Totzeit, Folienabsorption und Selbstabsorption. Auf die Korrektur von Nulleffekt und Totzeit, die nach allgemein bekanntem Verfahren erfolgte (25), soll hier nicht näher eingegangen werden. Die Größe der Korrektur für die

*) Diese Voraussetzung gilt nicht für Radionuklide, die durch Elektroneneinfang zerfallen.

Folienabsorption und Selbstabsorption hängt in starkem Maße von der Strahlenart und Energie ab. Werden sehr dünne Präparatträgerfolien und eine gute Präpariertechnik verwendet, so sind Korrekturen praktisch nur bei Nukliden mit niedrigen und mittleren β -Maximalenergien ($E_{\beta\text{max}} < 1 \text{ MeV}$) zu berücksichtigen.

Für die Folienabsorptionskorrektur wurden von Pate und Yaffe (27) für goldbedampfte VYNS-Folien gemessene Absorptionskurven zugrunde gelegt.

Die Korrektur der Selbstabsorption erfolgte nach einer bereits früher erprobten Extrapolationsmethode (25). Dabei wurde für jede Eichlösung eine Reihe von etwa 7 Präparaten mit möglichst konstanter Fleckgröße (ca. 5 mm \emptyset) und abnehmender Menge an Eichlösung (ca. 20 bis 2 mg) hergestellt. Für Na-24 und Pr-142 war praktisch kein Selbstabsorptionseffekt feststellbar, denn die spezifischen Aktivitäten (Imp/min mg Lösg.) waren unabhängig von der Einwaage. Bei Cs-137 wurden die mit einer verdünnten Lösung (ca. 0,1 μCi) erhaltenen Werte nach der Methode der kleinsten Quadrate linear auf die Lösungseinwaage Null extrapoliert. Dieser Wert dürfte nach früheren Vergleichsmessungen (25) um weniger als 1 % von dem tatsächlichen abweichen.

Durch das Zerfallsschema bedingte Korrekturen waren nur bei Cs-137 anzubringen. Dieses Nuklid zerfällt (28) zu 94 % unter Bildung des metastabilen Ba-137^m mit 2,6 min Halbwertszeit. Der γ -Übergang ist teilweise konvertiert

$$\alpha_K = 0,095 \quad \frac{K}{L} = 5,6 \quad \frac{L}{M+N} = 3,8$$

so daß zusätzlich Konversionselektronen gemessen werden. Eine Zusammenfassung der durch das Zerfallsschema sowie durch Folien- und Selbstabsorption bedingten Korrekturen für die betrachteten Nuklide enthält Tabelle 3. Aus ihr ist zu ersehen, daß für Cs-137 auf Grund des Zerfallsschemas für 100 Zerfälle 109,9 Impulse gemessen werden.

Tabelle 3 Korrekturen bei der 4π -Eichung von Na-24, Pr-142 und Cs-137

Nuklid	Teilchenart	Energie (MeV _b)	Anteil (%)	Lit.	Folienabsorption	Selbstabsorption	korrigierter Anteil (%)
Na-24	β^-	1,39	100	(29)	1,000	1,00	100
Pr-142	β^-	2,15	96	(18)	1,000	1,00	96
	β^-	0,58	4		0,998		$\frac{4}{100}$
Cs-137	β^-	0,514	94	(28)	0,998	} Extrapol.	93,8
	β^-	1,18	6		1,000		6
Ba-137 ^m	$e^-(K,L,M,N)$ a)	0,62-0,66	9,8		1,000		9,8
	γ		ca. 0,25				$\frac{0,25}{109,85}$

a) $e^-(K,L,M,N)$ = Konversionselektronen aus den K,L,M und N-Schalen

b) für Negatronen: β -Maximalenergie

2.1.2.2. Messungen mit dem geeichten γ -Spektrometer

Um mit einem γ -Spektrometer absolute Aktivitäten zu messen, muß es geeicht, d.h. dessen Fotowirkungsgrad bestimmt werden. Da dieser von vielen Einzelfaktoren abhängt, z.B. Geometrie, Präparateigenschaft, Selbstabsorption, Rückstreuung, Energie der Strahlung, Eigenschaften der Meßanordnung u.a. war es erforderlich, alle Messungen sowohl bei der Eichung als auch bei der Bestimmung unbekannter Aktivitäten unter definierten, reproduzierbaren Bedingungen durchzuführen. Es wurden daher stets mit dem gleichen Gerät bei fester Einstellung und übereinstimmender Geometrie gleichartige Präparate gemessen.

Grundlage der Aktivitätsbestimmung bildet die Tatsache, daß in einem γ -Spektrum die Zahl der Impulse im Fotopeak der absoluten Aktivität bzw. Zerfallsrate des vorliegenden Nuklids proportional ist. Es gilt die Beziehung:

$$F_p = C \underbrace{P W}_{U} \underbrace{f_a f_b f_c}_{B} t_m = C U B t_m \quad 15)$$

Darin bedeuten:

F_p = Zahl der Impulse im Fotopeak, korrigiert für Nulleffekt und Untergrund

C = Zerfallsrate

P = Peak to total-Verhältnis = $\frac{\text{Fotopeakrate}}{\text{Gesamty-Rate}}$

W = Wirkungsgrad = $\frac{\text{Gemessene Impulse}}{\text{Emittierte } \gamma\text{-Quanten}}$

f_a = Häufigkeit des betrachteten γ -Überganges

f_b = Faktor, der die Konversion der γ -Strahlung d. Überganges berücksichtigt

f_c = Faktor, der bei Anwesenheit von mindestens zwei koinzidenten γ -Übergängen die Bildung von Summenimpulsen berücksichtigt

U = Fotowirkungsgrad = $\frac{\text{Fotopeakimpulse}}{\text{Emittierte } \gamma\text{-Quanten}}$

B = Produkt aller aus dem Zerfallsschema resultierenden Korrekturen

t_m = Meßdauer

Die in Gleichung 15) auftretenden Faktoren lassen sich in zwei Gruppen einteilen, in Größen, die abhängig sind von

1. der γ -Energie und/oder der Meßanordnung (= U)
2. dem Zerfallsschema (= B)

Zerfallsraten können nach Gleichung 15) von Nukliden bestimmt werden, bei deren Zerfall γ -Strahlung emittiert wird und von β^+ -Strahlern, die über die sekundär gebildete Vernichtungsstrahlung gemessen werden. Voraussetzung für alle Eichungen ist die Kenntnis des Zerfallsschemas.

2.1.2.2.1. Auswertung von γ -Messungen

B wurde aus den Zerfallsdaten berechnet und U aus den Eichkurven (Abbildung 4) entnommen. Die Bestimmung von F_p erfolgte durch die drei nachfolgend beschriebenen Schritte, wobei stets von Spektren, die für den Nulleffekt korrigiert waren, ausgegangen wurde.

1. Abzug des Peakuntergrundes: Der Peak mit dem davorliegenden höherenergetischen Untergrund wurde in halblogarithmischer Darstellung gezeichnet und der Untergrund extrapoliert. Die experimentellen Werte wurden von den entsprechenden Impulszahlen der Kanäle unter dem Peak subtrahiert.
2. Logarithmische Differentiation zur Ermittlung der Peaklage und der Standardabweichung (Peakbreite): Die für den Untergrund korrigierten Impulszahlen der Kanäle unter dem Fotopeak wurden logarithmisch differenziert (31). Aus den Differenzen der Logarithmen wurde auf grafischem Wege die Energielage des Peaks u_0 und die Standardabweichung s ermittelt.
3. Bestimmung der Zahl der Impulse im Fotopeak: Für die Bestimmung von F_p wurden zwei verschiedene Verfahren angewandt, die beide davon ausgingen, daß die Form des Peaks durch die Gauß'sche Normalverteilungsfunktion wiedergegeben wird. Der ersten Methode lag folgende Beziehung zugrunde:

$$F_p = 1,07 h H \quad 16)$$

Darin bedeuten: h = Fotopeakhöhe (Imp/Meßzeit)

H = Halbwertsbreite (Kanäle)

Dabei wurde die Peakhöhe aus der grafischen Darstellung des Peaks ermittelt. Die Halbwertsbreite ist:

$$H = 2,355 s \quad 17)$$

Das zweite Verfahren bediente sich der Gauß'schen Verteilungsfunktion

$$F_p = \frac{k \cdot s \cdot \sqrt{2\pi}}{\exp \frac{1}{2} \left(\frac{u-u_0}{s} \right)^2} \quad 18)$$

k = Impulse (korr. f. Nulleffekt u. Untergrund) im Kanal u

Zur Ermittlung von F_p wurde von den drei Kanälen mit den höchsten Impulszahlen ausgegangen und von den so berechneten drei F_p -Werten der Mittelwert verwendet. In Tabelle 4 werden die Ergebnisse beider Auswerteverfahren am Beispiel des Mn-54 für 8 verschiedene Messungen miteinander verglichen. Daraus ist zu ersehen, daß die nach Gleichung 16) ermittelten Werte alle kleiner sind als die nach Gleichung 18). Die Abweichungen betragen im Mittel etwa 1 % (maximal 1,6 %). Da das Gleichung 16) zugrunde liegende Verfahren die Möglichkeit subjektiver Fehler bei der grafischen Bestimmung der Peakhöhe enthält, wurde die Auswertung der Messungen in der Regel nach der zweiten Methode durchgeführt.

Tabelle 4 Vergleich der verschiedenen Verfahren zur Bestimmung von F_p für Mn-54

Nr. der Messung	F_p (Imp.)		$\frac{F_{p2} - F_{p1}}{F_{p2}} \cdot 100$
	nach Gl.16 = F_{p1}	nach Gl.18 = F_{p2}	
1	104 800	106 100	1,22
2	136 600	137 700	0,80
3	103 800	105 400	1,52
4	162 500	164 500	1,22
5	104 800	105 700	0,85
6	93 500	94 000	0,53
7	65 500	66 100	0,91
8	83 700	85 100	1,64
			MW 1,08

2.1.2.2.2. Eichung des γ -Spektrometers

Zur Eichung des γ -Spektrometers (= Bestimmung des Fotowirkungsgrades) dienten die in Tabelle 5 zusammengestellten Nuklide, die in Form absolutge Eichter Lösungen zur Verfügung standen. Aus den Lösungen wurden Präparate definierter Aktivität (ca 1 μ Ci) hergestellt, mit denen Eichungen für die verschiedenen Meßpositionen ausgeführt wurden. Über Herkunft und Eichfehler der Lösungen gibt Tabelle 5 Auskunft. Für nahezu alle Nuklide waren Korrekturen durchzuführen, die sich aus dem Zerfallschema ergaben und die nachfolgend erläutert werden.

Hg-203: Die 0,279 MeV γ -Strahlung ist zum Teil konvertiert (32):

$$\alpha_K = 0,163 \quad \frac{K}{L} = 3,33 \quad \frac{L}{M+N} = 3,23$$

daraus folgt: $f_b = 0,815$ d.h. für 100 Hg-203-Zerfälle werden 81,5 γ -Quanten emittiert.

Cs-137: Zugrunde gelegt wurden die bereits auf Seite 17 angegebenen Zerfallsdaten. Daraus folgt: $f_a = 0,94$ und $f_b = 0,897$

Co-60: Co-60 zerfällt unter Emission zweier koinzidenter γ -Quanten

$$(E_{\gamma 1} = 1,33 \text{ MeV} \quad ; \quad E_{\gamma 2} = 1,17 \text{ MeV})$$

Ein von der Meßgeometrie abhängiger Anteil der koinzidenten Strahlung kann gleichzeitig vom Detektor erfaßt werden. Dabei wird ein Summenimpuls registriert, dessen Energie sich additiv aus den beiden Einzelanteilen zusammensetzt. Entsprechend den verschiedenen Mechanismen des γ -Strahlungsnachweises (Fotoeffekt, Comptoneffekt) kann die Energie des Summenimpulses im Bereich von ca. 0 bis $E_{\gamma 1} + E_{\gamma 2}$ liegen. Nur für den Fall, daß beide γ -Quanten durch Fotoeffekt nachgewiesen werden, wird ein Summenimpuls von der Energie $E_{\gamma 1} + E_{\gamma 2}$ registriert. Bei der Bestimmung der Fotopeakimpulse muß daher berücksichtigt werden, daß infolge der erwähnten Koinzidenzen zu wenig Impulse in den Fotopeak fallen. Unter Vernachlässigung der Winkelkorrelation kann die experimentell ermittelte Zahl der Fotopeakimpulse durch folgende Beziehung wiedergegeben werden:

$$f_{c1} = 1 - W_2 \quad 19)$$

$$F_{p1} = C \quad U_1 (1 - W_2) f_a \quad f_b \quad t_m \quad 20)$$

Durch die Zahlen-Indizes wird die Energie der γ -Strahlung charakterisiert (siehe Tabelle 5). Für den darin vorkommenden energie- und geometrieabhängigen Gesamtwirkungsgrad W wurden die von Heath (30) veröffentlichten Werte verwendet.

Na-24: Für Na-24 wurde die Korrektur der Summenkoizidenzen in der gleichen Weise wie bei Co-60 durchgeführt.

Na-22: Na-22 zerfällt unter Emission (100 %) von 1,27 MeV γ -Strahlung ($= \gamma_1$) und damit koinzidenter Positronenstrahlung (89,8 %). Aus der Positronenstrahlung entstehen durch die Graphitabdeckung in unmittelbarer Nähe des Präparates je zwei koinzidente, 180° korrelierte 0,51 MeV Vernichtungsquanten ($= \gamma_2$). Auch hier müssen die experimentell ermittelten Fotopeakimpulse für Koinzidenzverluste korrigiert werden. Für den Vernichtungspeak gilt:

$$f_{c2} = 2 (1 - W_1) \quad 21)$$

$$F_{p2} = 2 C U_2 (1 - W_1) f_{a2} f_{b2} t_m \quad 22)$$

Für den 1,27 MeV Fotopeak gilt:

$$f_{c1} = 1 - 2 f_{a2} W_2 \quad 23)$$

$$F_{p1} = C U_1 (1 - 2 f_{a2} W_2) f_{a1} f_{b2} t_m \quad 24)$$

Sämtliche durch das Zerfallsschema bedingten Korrekturen wurden in Tabelle 5 zusammengefaßt.

Das Ergebnis der Eichung enthält Abbildung 4, in der der Fotowirkungsgrad sowie die Meßraten für die Aktivität 1 μ Ci in Abhängigkeit von der γ -Energie für die verschiedenen Meßpositionen dargestellt wurden. Man erkennt, daß die Energieabhängigkeit des Fotowirkungsgrades im doppelt logarithmischen Koordinatensystem durch Geraden der allgemeinen Gleichung

$$y = a x^b \quad 25)$$

wiedergegeben wird. Dieser Kurvenverlauf wurde von verschiedenen Autoren (33, 34, 35) für den Energiebereich von 0,3 bis 3 MeV bestätigt. Die zu den Kurven der Abbildung 4 gehörenden Konstanten a und b wurden in Tabelle 6 zusammengestellt.

Tabelle 5 Daten für die Eichung des γ -Spektrometers

Nuklid	Energie der γ -Strahlung (MeV)	Eichlösung		Durch das Zerfallsschema bedingte Korrekturen		
		Herkunft 1)	Eichfehler	f_a	f_b	f_c
Na-24	γ_1 2,75	S	$\pm 3 \%$	1	1	$1 - W_2$
	γ_2 1,368			1	1	$1 - W_2$
Co-60	γ_1 1,332	IRC	$\pm 1 \%$	1	1	$1 - W_2$
	γ_2 1,17					
Na-22	γ_1 1,274	IAEA	$\pm 1 \%$	1	1	$1 - 2 f_{a2} W_2$
	γ_2 0,51(β^+)			0,898	1	$2 (1 - W_1)$
Mn-54	0,835	IRC	$\pm 3 \%$	1	1	1
Cs-137	0,662	S	$\pm 3 \%$	0,94	0,897	1
Hg-203	0,279	IRC	$\pm 3 \%$	1	0,815	1

1) IAEA = International Atomic Energy Agency, Wien

IRC = Diese Eichungen wurden freundlicherweise von Herrn Dr. E. Gantner im Institut für Radiochemie des KFK durchgeführt

S = mit dem 4π -Zähler selbst geeicht

Tabelle 6 Konstanten in Gleichung 25) für die Eichkurven der Abbildung 4

Position	a	b
1	89000	- 0,877
2	60300	- 0,867
3	46600	- 0,856
4	36500	- 0,881
5	23800	- 0,854
6	11000	- 0,833
7	6000	- 0,849

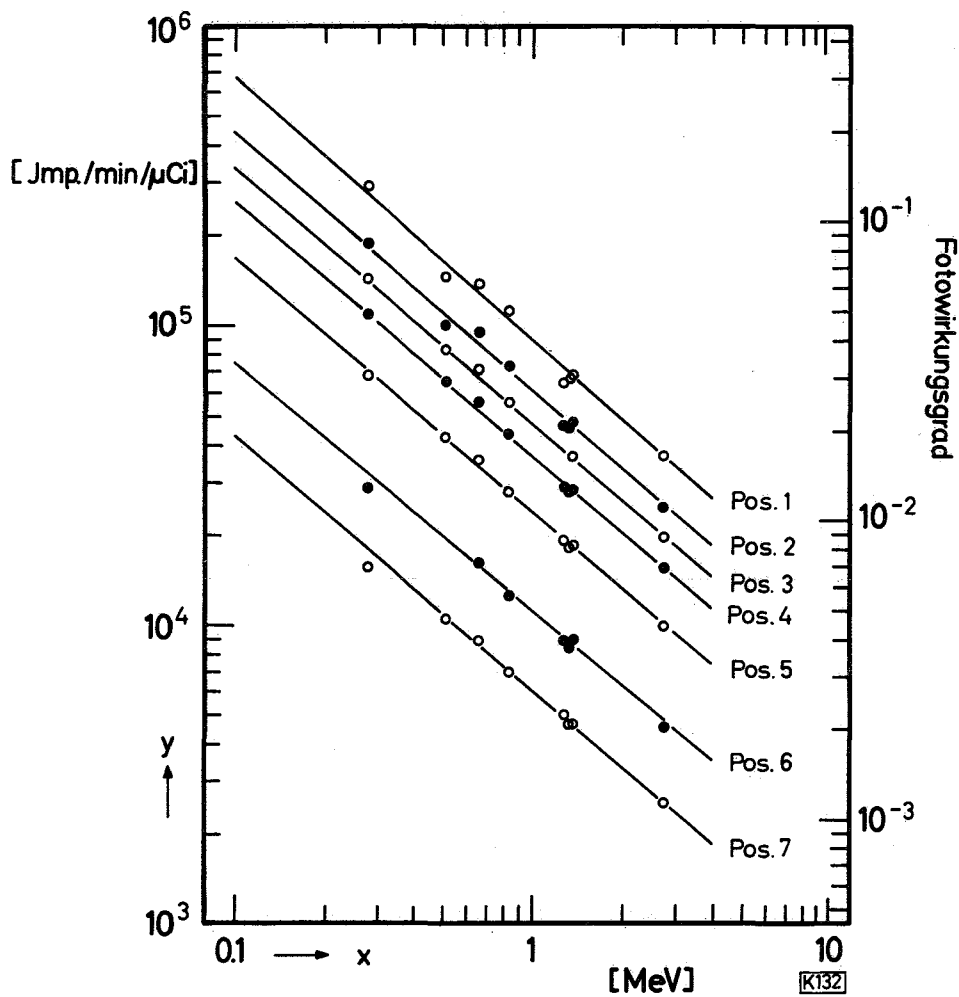


Abb. 4 Fotowirkungsgrad des γ -Spektrometers

Tabelle 7 gibt Meßergebnisse für ein Cs-137-Präparat wieder, die zu verschiedenen Zeiten im Laufe eines Monats gewonnen wurden. Daraus ist zu ersehen, daß die Abweichungen der F_p -Werte voneinander bei geringen Schwankungen von u_0 (um ca. 1,5 Kanäle) und s klein sind.

Tabelle 7 Reproduzierbarkeit von Messungen mit dem geeichten γ -Spektrometer

Meßdatum	Peakfläche (Imp/20 min)	u_0 (Kanäle)	s
3.5.65	119 500	46,01	1,636
6.5.65	120 170	45,62	1,637
10.5.65	119 640	45,43	1,613
12.5.65	120 250	45,48	1,611
14.5.65	119 180	45,57	1,624
21.5.65	119 660	45,03	1,597
2.6.65	118 820	44,42	1,587
Mittelwert:	119 600	45,36	1,615
mittl.Fehler des Mittel- wertes	± 192 ($\pm 0,16 \%$)	$\pm 0,19$ ($\pm 0,42 \%$)	$\pm 0,007$ ($\pm 0,44 \%$)

2.1.2.3. Messungen mit dem geeichten β -Zähler

Absolute Aktivitäten von Pr-142-Präparaten wurden mit einem geeichten β -Zähler nach einem von Ruf und Münzel ausführlich beschriebenen Verfahren (36) gemessen. Dabei wurde zunächst der Wirkungsgrad einer Standardmeßanordnung in Abhängigkeit von der Präparatdicke mit Präparaten bekannter absoluter Aktivität ermittelt. Mit der so geeichten Anordnung konnten anschließend Präparate unbekannter Aktivität absolutgeeicht werden.

Für die hier verwendeten Pr-142-Präparate war zu berücksichtigen, daß außer dem betrachteten Nuklid Pr-Isotope kleinerer Nukleonenzahlen sowie Ce-Tochterprodukte anwesend sein konnten. Da diese teilweise unter Emission von Positronen zerfallen, erschien es sinnvoll, die Wirkungsgrade auch unter Verwendung von Absorbern zu messen, die diese Strahlung unterdrücken. Außer durch Positronenemission zerfallen die anderen Nuklide ganz oder teilweise durch Elektroneneinfang. Auf die dabei ausgesandte Röntgenstrahlung von maximal etwa 38 keV spricht der β -Zähler an. Um diesen Effekt möglichst klein zu halten, wurde daher als Absorbermaterial Blei statt des üblichen Aluminium gewählt. Die Halbwertsdicken für eine 38 keV Röntgenstrahlung betragen für Pb ca. 0,09, für Al ca. 1,6 mg/cm² (9). Das bedeutet, daß durch die gleiche Absorberdicke von z.B. 1,6 mg/cm² bei Al eine Schwächung der Röntgenstrahlung auf 50 %,

bei Pb jedoch auf ca. $3,5 \cdot 10^{-4}$ % erfolgt. Die Intensität der β -Strahlung wird dagegen durch gleiche Absorberdicken etwa in gleichem Maße geschwächt.

Die unter Verwendung von Pb-Absorbern gemessenen Wirkungsgrade wurden in Tabelle 10 dargestellt. Aus den Daten ist zu ersehen, daß der Wirkungsgrad für alle Messungen unabhängig von der Pr-Menge war. Dieser Befund stimmt mit vergleichbaren Ergebnissen von Ruf und Münzel für Sr-90/Y-90 (36) überein, bei denen ebenfalls ein von der Präparatdicke unabhängiger Wirkungsgrad gefunden wurde. Es konnten daher aus den Meßserien für die einzelnen Absorber Mittelwerte gebildet werden, die zusammen mit ihrem mittleren Fehler ebenfalls in Tabelle 10 angegeben wurden.

2.1.2.4. Trennung der Lanthanide durch Ionenaustauschchromatografie

Die Affinität oder Bindefestigkeit zwischen den Lanthanid-Kationen und dem Harz nimmt, wie die von Surls und Choppin (37) gemessenen Verteilungskoeffizienten zeigen, mit steigender Ordnungszahl geringfügig ab. Diesen Effekt kann man durch die Verwendung von Komplexbildnern wie α -Hydroxyisobuttersäure (= α -HIB) erhöhen. Diese bilden mit Lanthanidionen leichtlösliche Chelatkomplexe, deren Stabilität mit steigender Ordnungszahl zunimmt (38, 39). Beide Effekte wirken somit in gleichem Sinne und verbessern die Trennung.

An die Trennungen waren folgende Forderungen gestellt, die sich aus den Versuchsbedingungen ergaben:

1. Zu trennende Elemente: Es sollten die Lanthanide Nd, Pr und Ce voneinander getrennt werden. Soweit Na-24 als Monitor verwendet wurde, mußten auch Aluminium und Na-24 abgetrennt werden.
2. Menge der zu trennenden Elemente: Für Versuche, bei denen eine Ausbeutebestimmung durchzuführen war, mußte mit der Anwesenheit von maximal ca. 10 mg der jeweiligen Elemente gerechnet werden. Die Austauschersäulen waren daher so zu bemessen, daß benachbarte Lanthanide in diesen Mengen noch voneinander getrennt werden konnten.
3. Zeitbedarf: Bei allen Trennungen wurde versucht, nicht mehr als höchstens zwei Halbwertszeiten aufzuwenden.
4. Ein Teil der Bestrahlungen wurde nach der "stacked foil Methode" durchgeführt. In diesen Fällen mußte eine der Zahl der bestrahlten Proben entsprechende Anzahl von Austauschertrennungen gleichzeitig durchgeführt werden.

2.1.2.4.1. Trennungen mit großen Austauschersäulen

Für die Trennung der langlebigen Nd- und Pr-Nuklide und Al in mg-Mengen wurde eine Austauscherapparatur verwendet, mit der sechs Trennungen gleichzeitig durchgeführt werden konnten. Wie Smith und Hoffman (40) zeigten, ist die Peaklage und Peakbreite bei der Elution mit α -HIB p_H -abhängig. Für die Trennung der schweren Lanthanide ist es am günstigsten, mit niedrigeren p_H -Werten zu arbeiten, während die Trennbedingungen der leichteren Lanthanide durch höhere p_H -Werte verbessert werden. Sollen, wie für diese Anlage beabsichtigt, eine größere Anzahl von Lanthaniden voneinander getrennt werden, so ist es daher vorteilhaft, während der Elution den p_H -Wert zu verändern. Die kontinuierliche Änderung des p_H -Wertes wurde hier nach einem Verfahren von Wolfsberg (41) erreicht, bei dem zwei Ausgangslösungen mit unterschiedlichem p_H langsam miteinander vermischt wurden.

Eine Elutionskurve für die Abtrennung von Pr und Nd aus dem Reaktionsgemisch bei Anwesenheit von je ca. 6 mg Träger, zeigt Abbildung 5. Aus ihr ist zu ersehen, daß beide Elemente vollständig voneinander getrennt wurden.

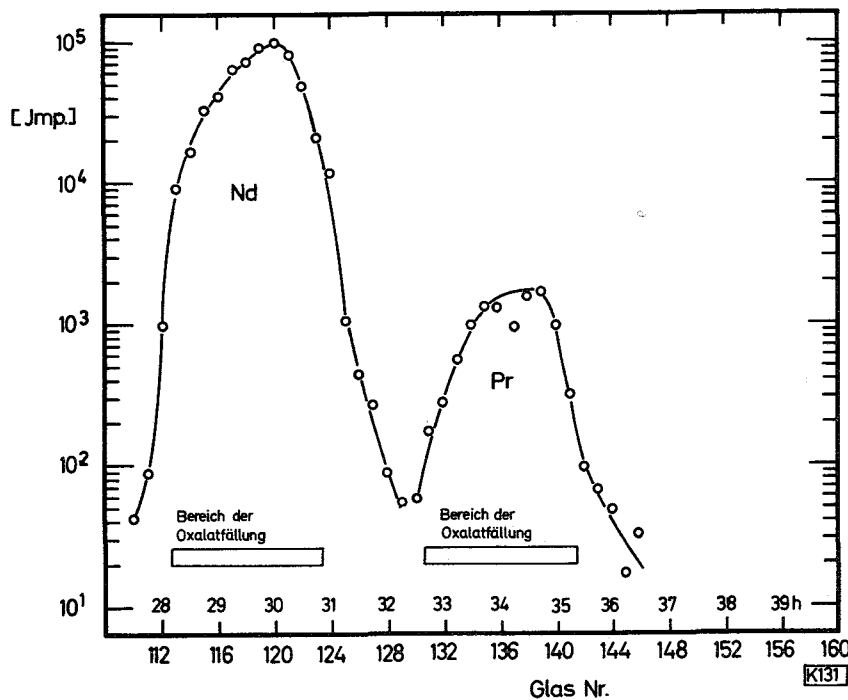


Abb. 5 Elutionskurve für die Trennung von Nd und Pr

In der Abbildung sind die Fraktionen gekennzeichnet, bei denen sich durch Zugabe von Oxalsäure eine Fällung bildete. Diese wurden zur Herstellung der Meßpräparate verwendet. Auf einer zweiten Abszissenskala kann der Zeitbedarf für die Elution abgelesen werden. Das durch das Monitorverfahren anwesende Al wurde gleich zu Beginn der Trennung (Glas Nr. 20 bis 25) eluiert, während Na-24 überraschenderweise nur sehr langsam wanderte und sich noch nach der Elution der Lanthanide auf der Säule befand.

2.1.2.4.2. Trennung mit kleinen Austauschersäulen

Für die Messung von Nd-141 war es nötig, Nd in viel kürzerer Zeit von den anderen Reaktionsprodukten abzutrennen. Hierfür wurden kleinere Trennsäulen verwendet. Da Nd-140 als isotoper Monitor diente, war eine Ausbeutebestimmung und damit eine Trägerzugabe nicht erforderlich. Voneinander zu trennen waren also trägerfreie Nd-Mengen und etwa 1 mg Pr. In Vorversuchen wurde festgestellt, daß dieses Trennproblem mit kleinen Säulen in ca. 1,5 Std. zufriedenstellend zu lösen war. Abbildung 6 zeigt eine Elutionskurve, die bei der Trennung von 1,2 mg deutronenbestrahltem Pr_{60}^{111} gewonnen wurde. Aus der Kurve ist zu erkennen, daß die Nd- und Pr-Peaks sich nur geringfügig überschneiden und daß die Nd-Fraktion, wenn auf die letzten ca. 15 Tropfen des Peaks verzichtet wird, frei von Pr gewonnen werden kann. Einen Beweis für die Reinheit der auf diesem Wege erhaltenen Nd-Fraktion lieferten die von den Nd-Präparaten aufgenommenen β -Abfallskurven, in denen nur Halbwertszeiten von Nd-141 und Nd-140 vorhanden waren.

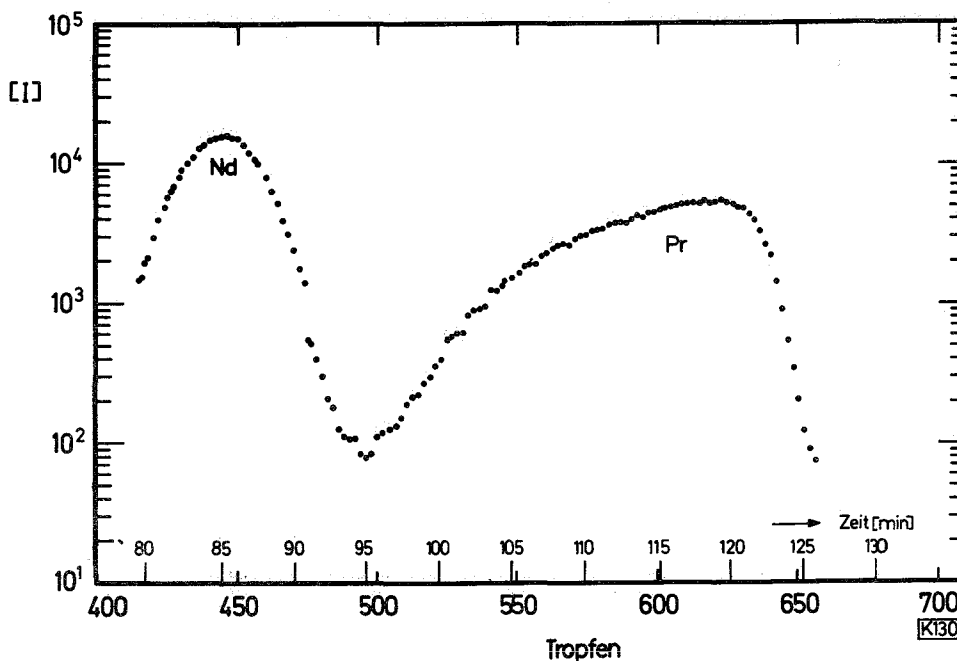


Abb. 6 Elutionskurve für die Trennung von Nd und Pr

2.1.2.5. Ausbeutebestimmung

Zur Bestimmung der (d,3n)- und (d,p)-Wirkungsquerschnitte mußten die Substanzverluste bei der chemischen Aufarbeitung berücksichtigt werden. Um diese besonders bei trägerfreien Aktivitäten klein zu halten und quantitativ zu bestimmen, wurde vor der Aufarbeitung eine definierte Menge eines inaktiven, isotopen Trägers zugesetzt und später der verbliebene Trägeranteil ermittelt. Solche Ausbeutebestimmungen erfolgten durch komplexometrische Titration mit Äthylendiamintetraessigsäure (= EDTA) und Xylenolorange als Indikator. Ausgegangen wurde dabei von den Pr- und Nd-Präparaten, die zur Aktivitätsmessung verwendet worden waren, und in denen die Lanthanide in Form der Oxalate vorlagen. Lyle und Rahman (42, 43) beschreiben zwei Wege zur komplexometrischen Bestimmung der Lanthanide in Oxalatfällungen:

1. Direkte Titration der Oxalate. Hierbei wird die Oxalatfällung in einem Überschuß von EDTA-Lösung bekannten Gehaltes aufgelöst und das überschüssige EDTA mit eingestellter Zn-Lösung zurücktitriert (42).
2. Titration der Lanthanide nach Zerstörung des Oxalatrestes z.B. durch Veraschung. Das Lanthanidoxid wird in Säure gelöst und mit EDTA titriert (43).

Die experimentelle Prüfung beider Verfahren zeigte, daß die zweite Methode zu besseren Ergebnissen führte. Sie wurde daher für alle Ausbeutebestimmungen verwendet. Die Zuverlässigkeit des Verfahrens wurde an acht Sm-oxalat-Proben geprüft. Dabei wurde ein mittlerer Fehler des Mittelwertes von $\pm 0,06\%$ gefunden.

Bei der Ausbeutebestimmung für Pr war zu beachten, daß außer dem genau bekannten Trägerzusatz noch ein weniger gut definierter Pr-Anteil aus der PrAlO_3 -Targets substanz berücksichtigt werden mußte. Die PrAlO_3 -Menge (etwa 1 mg) war vor der Bestrahlung mit der Mikrowaage genau bestimmt worden. Nach der Bestrahlung wurde versucht, das PrAlO_3 vollständig in das Na-24-Meßpräparat zu überführen, so daß nur ein geringer PrAlO_3 -Anteil, der 0,1 mg nicht überstieg, auf der Ag-Brief folie zurück blieb. Es muß daher bei der Pr-Ausbeutebestimmung mit einem zusätzlichen Fehler von maximal - 1 % gerechnet werden.

2.1.3. Anregungsfunktion für die Reaktion $\text{Pr-141}(d,3n)\text{Nd-140}$

2.1.3.1. Targets substanz

Zur Bestimmung dieser Anregungsfunktion wurde PrAlO_3 mit Deuteronen bestrahlt. Bei PrAlO_3 handelt es sich um eine TM-Mischung, in der beide Substanzen in Form einer im Perowskitgitter kristallisierenden chemischen Verbindung vorliegen (44). Die Verbindung ist thermisch und chemisch sehr stabil. Sie schmilzt erst bei hohen Temperaturen (ca. 1600°C) und ist praktisch in allen Säuren unlöslich. Sie läßt sich lediglich durch saure Salzschnmelzen (z.B. mit Pyrosulfat) aufschließen.

2.1.3.2. Monitorreaktion $\text{Al-27}(d,\alpha)\text{Na-24}$

Als Ausgangssubstanz diente das im PrAlO_3 vorhandene Aluminium, das in der Natur als Reinnuklid Al-27 vorkommt. Das Reaktionsprodukt Na-24 zerfällt mit 15,04 h Halbwertszeit unter Emission (100 %) einer sehr energiereichen 2,75 MeV γ -Strahlung, die in dieser Arbeit zur Na-24-Bestimmung verwendet wurde. Die Monitoranregungsfunktion ist verschiedentlich untersucht worden (45, 46, 47); ausführliche Messungen für Deuteronenergien bis 51 MeV wurden von Christaller mit dem Karlsruher Zyklotron durchgeführt (48). Die dabei ermittelte Anregungsfunktion, für deren Werte ein mittlerer Fehler von $\pm 2,5\%$ angegeben wird, gibt Abbildung 7 wieder. Auf sie werden die Na-24-Messungen dieser Arbeit bezogen.

Da bei Deuteronenbestrahlungen schnelle Neutronen entstehen, ist es möglich, daß Na-24 zusätzlich durch eine (n,α) -Reaktion mit Al-27 gebildet wird. Dieser Anteil ist jedoch klein (48) und konnte daher bei den hier durchgeführten Messungen vernachlässigt werden.

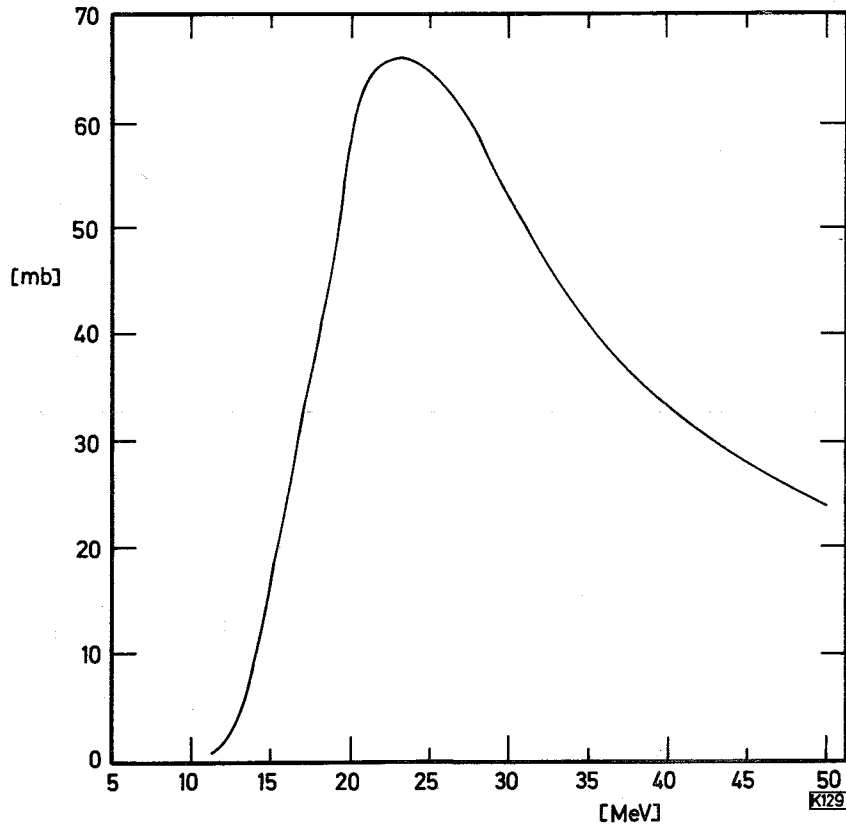


Abb. 7 Anregungsfunktion für die Reaktion $\text{Al-27}(d, \alpha)\text{Na-24}$
nach Christaller (48)

2.1.3.3. Bestrahlungsbedingungen

Bestrahlt wurden im normalen und im ausgelenkten Innenstrahl Folienpakete mit höchstens 6 Folienbriefen, zwischen die Al-Folien zur Energierminderung gelegt worden waren. Der Energieverlust wurde hier wie auch bei den später beschriebenen Bestrahlungen nach den von Williamson und Boujot (53) veröffentlichten Energie-Reichweitebeziehungen berechnet.

2.1.3.4. Aktivitätsbestimmung von Nd-140

Nd-140 zerfällt zu 100 % durch Elektroneneinfang (13). Dabei werden die zum Folgekern Pr-140 gehörende Röntgenstrahlung bzw. die daraus durch Konversion entstandenen Augerelektronen ausgesandt. Beide waren unter den gegebenen Meßbedingungen zur quantitativen Bestimmung von Nd-140 nicht geeignet. Bei dem radioaktiven Zerfall des Nd-140 entsteht als Folgeprodukt das ebenfalls radioaktive Pr-140 mit 3,4 min Halbwertszeit. Dieses zerfällt zu 50 % durch Elektroneneinfang und zu 50 % unter Emission einer Positronenstrahlung von 2,32 MeV Maximalenergie in das stabile Ce-140 (19). Die energiereiche β^+ -Strahlung kann sowohl mit dem β -Zähler als auch nach Umwandlung in Vernichtungsstrahlung mit dem γ -Spektrometer gemessen werden.

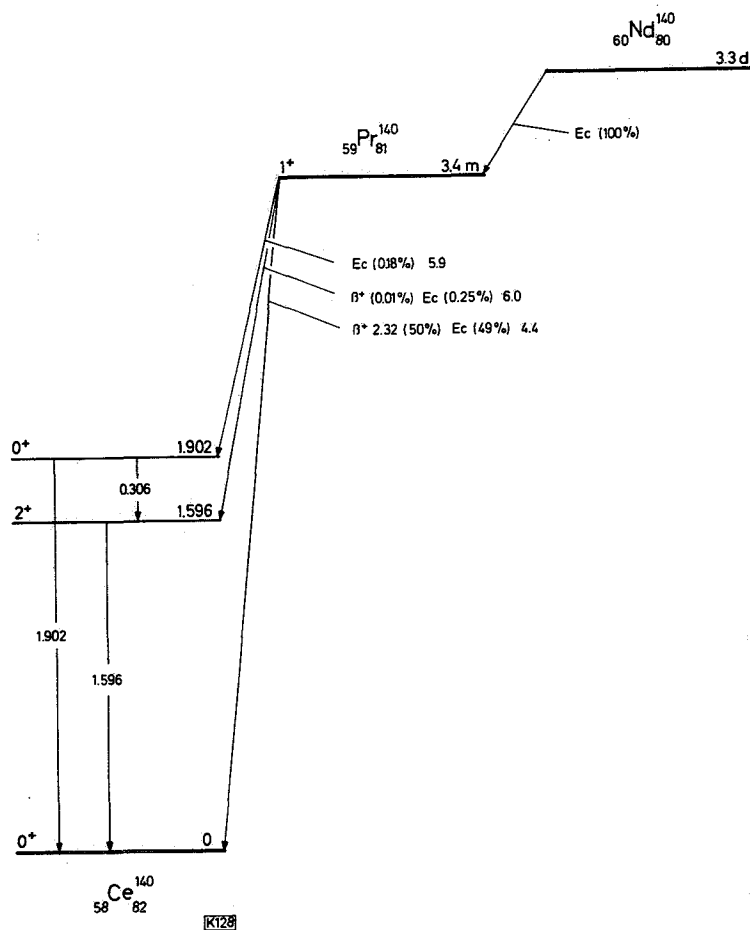


Abb. 8 Zerfallsschema für Nd-140/Pr-140 nach Hisatake et al. (19)

Da die β -Messung durch die Sekundärstrahlung des Elektroneneinfangs gestört wird, wurde in diesem Falle die γ -Messung vorgezogen. Dabei wurde die Tatsache ausgenutzt, daß die kurzlebige Tochter Pr-140 sich bereits nach kurzer Zeit (ca. 35 min) mit der langlebigen Muttersubstanz Nd-140 im radioaktiven Gleichgewicht befindet. In diesem Zustand sind die Aktivitäten beider Nuklide gleich groß. Somit wurde durch Bestimmung von Pr-140 die Aktivität des Nd-140 erhalten. Für eine ungestörte Messung von Nd-140 über die Vernichtungsstrahlung des Tochterproduktes mußte die Abwesenheit anderer Positronenstrahler vorausgesetzt werden. Diese Forderung war von vornherein nicht erfüllt, da durch die Deuteronenbestrahlung der TM-Verbindung eine große Anzahl verschiedener β^+ -Strahler gebildet wurde. Tabelle 8 enthält eine Zusammenstellung der in Betracht zu ziehenden Nuklide mit Halbwertszeiten von mehr als 4,5 Stunden.

Tabelle 8 Positronenstrahler mit Halbwertszeiten von mehr als 4,5 h, die bei der Deuteronenbestrahlung von PrAlO_3 entstehen können

Kernreaktion	Q-Wert (MeV)	Halbwertszeit	Häufigkeit der β^+ Strahlg (%)	Anteil bei Bestr. Ende 1)	Rel.meßb. Anteil b. Bestr. Ende 2) 3)	Rel.meßb. Anteil nach 3,3d Wartezeit 3)
Pr-141 (d,3n)Nd/Pr-140	- 12,7	3,3 d	50	$8 \cdot 10^{-3}$	1	1
(d,4n)Nd-139	- 22,9	5,5 h	10	0,12	3	$< 10^{-4}$
(d,5n)Nd-138	- 31,9	ca. 5 h?		0,13		
(d,p3n)Pr-139	- 19,3	4,5 h	10,9	0,14	3,5	$< 10^{-4}$
(d, α 4n)Ce-135	- 23,0	17 h	1	0,04	0,1	$8 \cdot 10^{-3}$
(d, α 6n)Ce-133	- 41,1	6,3 h		0,10		
(d, α p3n)La-135	- 20,1	19,8 h	0,1	0,03	$0,8 \cdot 10^{-2}$	10^{-3}
Al-27 (d,p2n)Al-26	- 15,3	$7,4 \cdot 10^5$ a	84,6	10^{-10}	$0,21 \cdot 10^{-7}$	$0,4 \cdot 10^{-7}$
(d, α p2n)Na-22	- 24,7	2,6 a	90	$3 \cdot 10^{-5}$	$0,67 \cdot 10^{-2}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$

- 1) Berechnet f. eine Bestrahlungsdauer von 1 h nach Gleichung 6) bezogen auf Sättigungsaktivität
- 2) = Anteil b. Bestr.-Ende mal β^+ -Häufigkeit
- 3) bezogen auf Nd-140

Nd-140 wurde auf folgenden zwei Wegen gemessen:

1. Durch Ionenaustausch wurden alle anderen Elemente von Nd abgetrennt und Nd-140 bestimmt. Dieses Verfahren erforderte als wesentliche Arbeitsschritte den chemischen Aufschluß der TM-Substanz, die Ionenaustauschertrennung und die Ausbeutebestimmung. Da bei der Trennung eine Pr-Fraktion anfiel, konnte gleichzeitig auch Pr-142 bestimmt werden.
2. Nach einer Wartezeit, in der alle anderen Nuklide mit kürzeren Halbwertszeiten als Nd-140 ausreichend abgefallen waren, wurde Nd-140 in der unveränderten TM-Substanz gemessen. Diese Methode hatte den Vorteil, daß für die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten lediglich zwei Messungen im geeichten γ -Spektrometer (Na-24 und Nd-140) erforderlich waren.

In Abbildung 9 sind die nach dem ersten Verfahren gefundenen Wirkungsquerschnitte durch Kreise, die nach dem zweiten durch Quadrate dargestellt. Man erkennt, daß keine systematischen Abweichungen zwischen den beiden Wertegruppen vorhanden sind.

Für das erste Verfahren waren wegen der großen Halbwertszeitunterschiede zwischen Nd-140 und anderen Nd-Nukliden keine besonderen Schwierigkeiten zu erwarten. Abbildung 10 zeigt als Beispiel zwei verschiedene im geeichten γ -Spektrometer 4,5 bzw. 6,5 Tage nach Bestrahlungsende aufgenommene Spektren, die zur Bestimmung der Nd-140-Aktivität dienten. Daraus ist zu ersehen, daß nach den Abklingzeiten, die bei allen Nd-140 Bestimmungen eingehalten wurden, tatsächlich nur noch Nd-140/Pr-140 gemessen wurde. Außer der Vernichtungslinie erschien lediglich die dem Pr-140 zugehörige 1,6 MeV γ -Linie. Auch die von den Nd-Präparaten aufgenommenen β -Abfallskurven zeigten nur die Anwesenheit von Nd-140/Pr-140 und zum Teil von Ce-139 als langlebigen Untergrund.

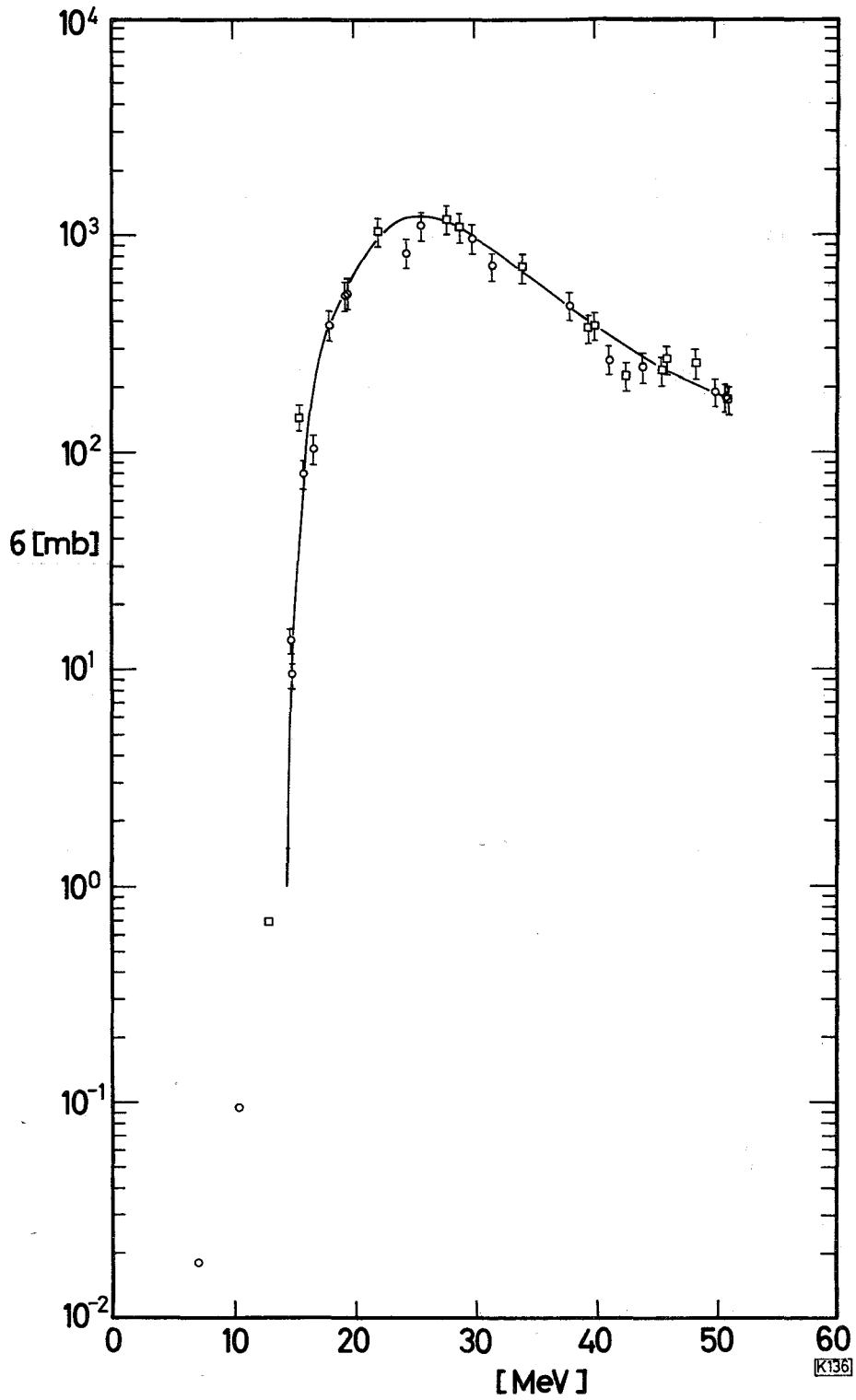


Abb. 9 Anregungsfunktion für die Reaktion Pr-141(d,3n)Nd-140

○ mit Ausbeutebestimmung

□ ohne Ausbeutebestimmung

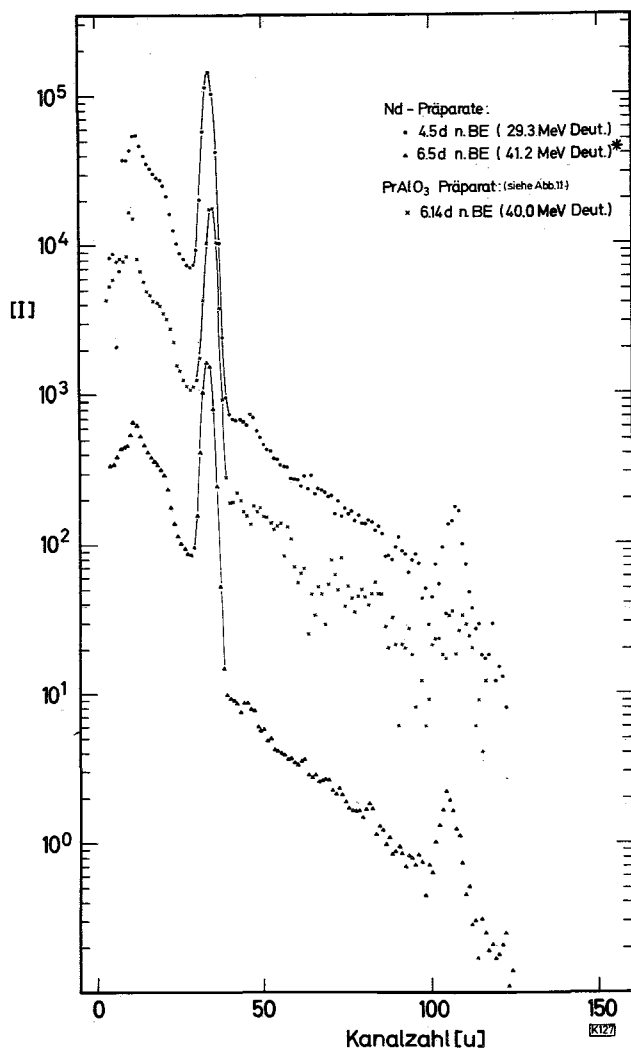


Abb. 10 γ -Spektren der Nd-Präparate nach verschiedenen Wartezeiten
 (n. BE = nach Bestrahlungsende; alle Messungen 20 min in Pos.7)
 *) dargestellt 1/10 der gemessenen Aktivität

Zur Beurteilung der möglichen Vorteile, die das zweite Verfahren bietet, erschien es sinnvoll, die Größenordnung der Störungen vorher abzuschätzen. In Tabelle 8 sind in den letzten beiden Spalten die auf Nd-140 bezogenen, über die Vernichtungsstrahlung meßbaren Anteile der anderen Produkte unter der Voraussetzung angegeben, daß für alle gleiche Wirkungsquerschnitte gelten. Bereits nach einer Nd-140 Halbwertszeit (= 3,3 d) sollte danach der Einfluß der störenden Nuklide nur noch im Promillebereich liegen. Die tatsächlichen Verhältnisse werden durch Abbildung 11 wiedergegeben, in der die nach verschiedenen Wartezeiten aufgenommenen γ -Spektren dargestellt sind. Man erkennt, daß nach ca. 6 Tagen die Spektren von PrAlO_3 und der abgetrennten Nd-Fraktion praktisch übereinstimmen. Das bedeutet, daß

auch mit dem zweiten Verfahren Nd-140 ungestört gemessen werden konnte. Aus den γ -Spektren und aus 17 Monate nach Bestrahlungsende durchgeführten β -Messungen der Präparate ließ sich abschätzen, daß der nach Tabelle 8 im Prozentbereich liegende Na-22-Anteil tatsächlich kleiner als 0,5 % gewesen sein mußte. Dieser Befund stimmt mit den von Ring und Litz (49) ermittelten Wirkungsquerschnitten für die Bildung von Na-22 überein. Der Abfall der Nd-140-Präparate wurde im Methandurchflußzähler für die Dauer von 13 bis 28 Tagen verfolgt. Unter Verwendung des Programms RADAR-3 für einen IBM-7074-Rechenautomaten (50) konnte daraus die Halbwertszeit für Nd-140 zu

$$3,37 \pm 0,02 \text{ d}$$

berechnet werden.

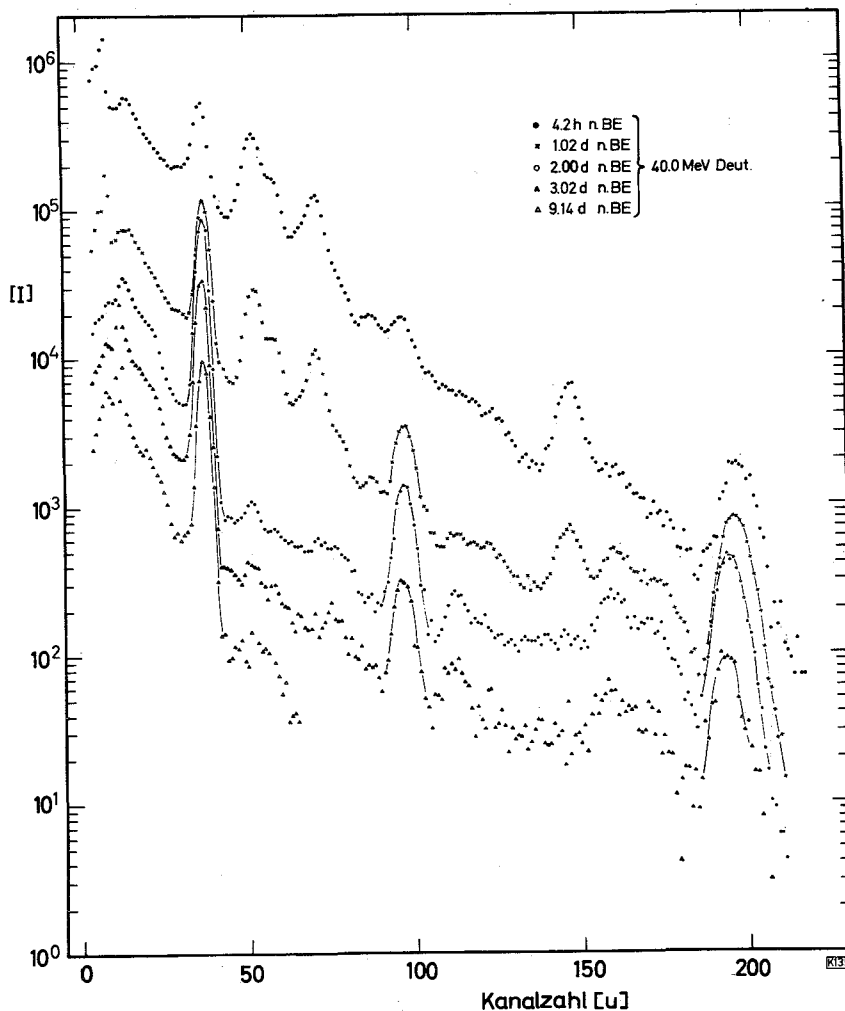


Abb. 11 γ -Spektren der PrAlO_3 -Präparate nach verschiedenen Wartezeiten (alle Messungen 20 min in Pos.7)

2.1.4. Anregungsfunktion für die Reaktion Pr-141(d,p)Pr-142

2.1.4.1. Targetsubstanz, Monitorreaktion und Bestrahlungsbedingungen

Die Bestimmung von Wirkungsquerschnitten für Pr-142 wurde mit der für Nd-140 kombiniert. Targetsubstanz, Monitorreaktion und Bestrahlungsbedingungen waren daher die gleichen wie bei der Bestimmung von Nd-140.

2.1.4.2. Aktivitätsbestimmung von Pr-142

Das gewünschte Reaktionsprodukt Pr-142 ist ein β^- -Strahler, der zum größten Teil (96 %) energiereiche β -Teilchen mit 2,15 MeV Maximalenergie aussendet. Außerdem werden zu 4 % 0,58 MeV β^- -Teilchen emittiert und damit koinzident eine 1,57 MeV γ -Strahlung (siehe Abbildung 12).

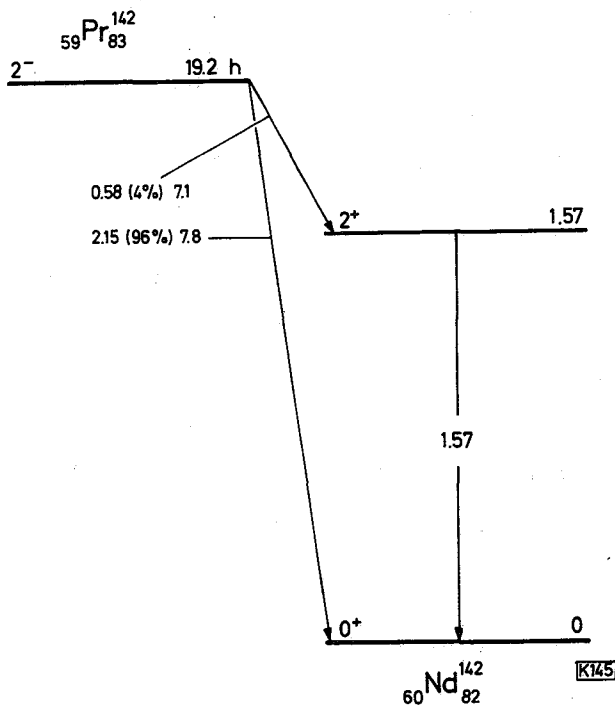


Abb. 12 Zerfallsschema für Pr-142 (18)

Auf Grund der Zerfallseigenschaften wurde Pr-142 mit dem β -Zähler gemessen. Da dieser praktisch auf sämtliche bei der Bestrahlung gebildeten Reaktionsprodukte ansprach und durch Einlegen von Wartezeiten allein keine ausreichende Beseitigung störender Nuklide erreicht werden konnte, war eine vorherige Pr-Abtrennung erforderlich, die unter Verwendung großer Ionenaustauschersäulen in ca. 36 Stunden erfolgte. Die Pr-Fraktionen enthielten außer Pr-142 andere Pr-Isotope mit maximal 4,5 h Halbwertszeit, die alle Positronen emittierten und somit die Pr-142-Messung störten. Durch Wartezeiten und Verwendung von Bleiabsorbern konnten die störenden Aktivitäten jedoch soweit unterdrückt werden, daß sie nicht mehr nachweisbar waren.

Alle Pr-142-Messungen wurden 83 bis 135 Stunden nach Bestrahlungsende ausgeführt. Dabei wurden die zur Eichung des β -Zählers benutzten Bleiabsorber verwendet. Die aus den Aktivitätswerten unter Anwendung von Gleichung 14) berechneten Wirkungsquerschnitte sind in Abbildung 13 dargestellt. Die untere Grenze von 12 MeV ergab sich dadurch, daß die Werte für die Monitoranregungsfunktion bei kleineren Deuteronenenergien mit Unsicherheiten behaftet sind.

Für alle Präparate konnte auf folgendem Wege nachgewiesen werden, daß tatsächlich nur die Aktivität von Pr-142 gemessen worden war:

1. Für jedes Präparat wurden aus den mit den verschiedenen Pb-Absorbern gefundenen Meßwerten die relativen Wirkungsgrade (z.B. bezogen auf den dünnsten Pb-Absorber) berechnet. Diese Werte stimmten mit den entsprechenden aus der Eichung herrührenden überein.
2. Die Analyse der ohne Absorber gemessenen β -Abfallskurven ergab, daß keine kurzlebigeren Pr-Nuklide anwesend waren. In einigen Fällen wurde ein geringfügiger Untergrund beobachtet, der wahrscheinlich von Tochterprodukten mit großer Halbwertszeit, z.B. Ce-139 herrührte. Unter Verwendung des Rechenprogrammes RADAR-3 (50) ergab sich für Pr-142 eine Halbwertszeit von

$$19,09 \pm 0,07 \text{ h}$$

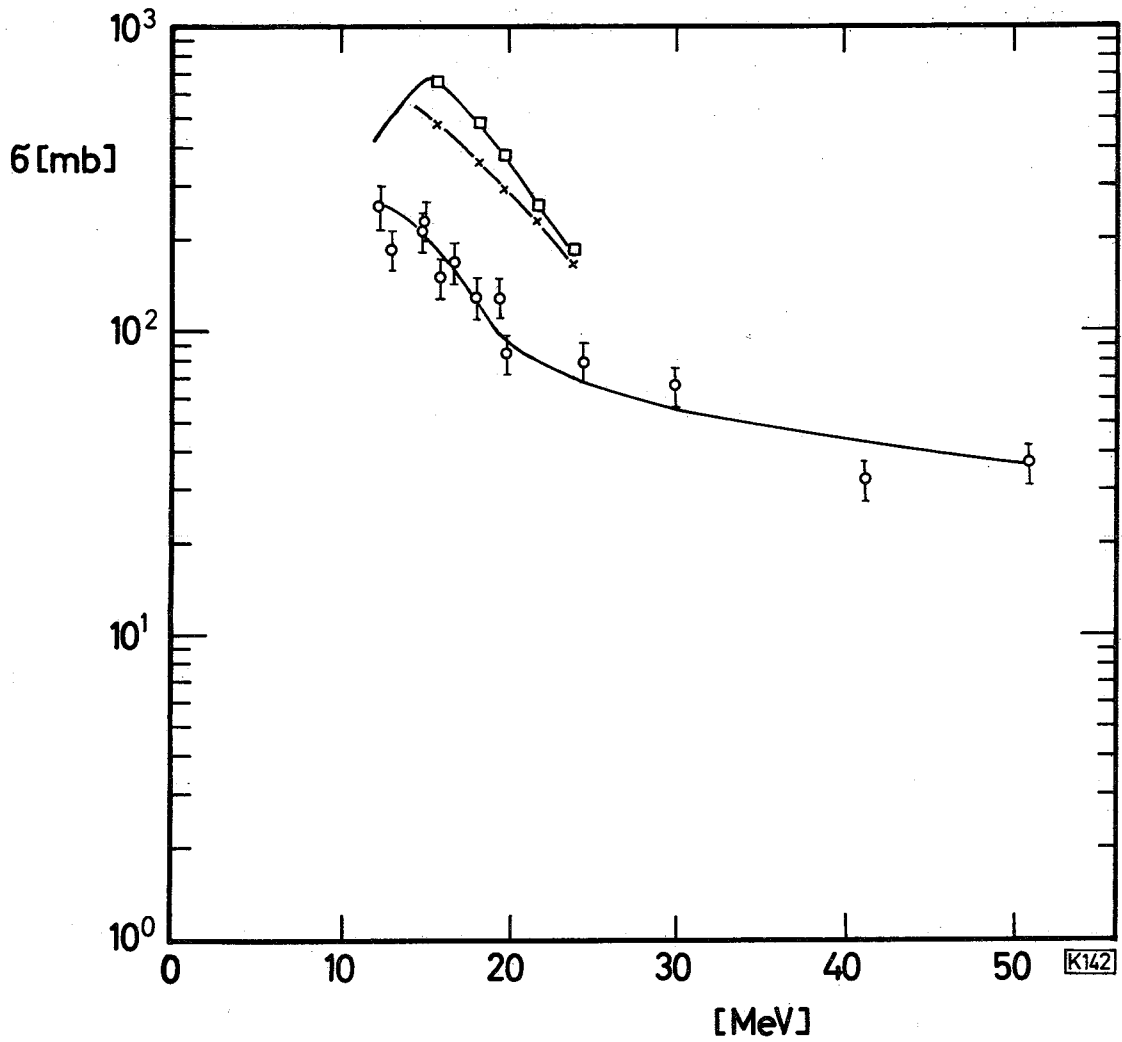


Abb. 13 Anregungsfunktionen für die Reaktionen Pr-141(d,p)Pr-142 und Pr-141(d,2n)Nd-141

- (d,p)-Wirkungsquerschnitte
- (d,2n)-Wirkungsquerschnitte, gemessen mit Hilfe der β^+ -Vernichtungsstrahlung
- × (d,2n)-Wirkungsquerschnitte, gemessen mit Hilfe der 1,3 MeV γ -Strahlung

2.1.5. Anregungsfunktion für die Reaktion Pr-141(d,2n)Nd-141

2.1.5.1. Targets substanz

Zur Bestimmung dieser Anregungsfunktion wurde Pr_6O_{11} als TM-Substanz verwendet. Um Störungen durch evtl. in Spuren vorhandene Verunreinigungen zu vermeiden, war die Ausgangssubstanz unter Verwendung der großen Ionenaustauschersäulen vorher gereinigt worden.

2.1.5.2. Monitorreaktion

Der Strahlstrom wurde durch die Monitorreaktion Pr-141(d,3n)Nd-140 gemessen (siehe Abbildung 9). Bei dieser Strommessung wurde die VM-Methode in ihrer idealen Form angewandt, bei der Target- und Monitorsubstanz übereinstimmen und daher Ausbeuten nicht bestimmt zu werden brauchten.

2.1.5.3. Bestrahlungsbedingungen

Bei allen Experimenten wurden jeweils zwei Folienbriefe in "stacked foil" Anordnung bestrahlt. Als Folienmaterial konnte Aluminium verwendet werden, da die Na-24-Bildung nicht störte.

2.1.5.4. Aktivitätsbestimmung von Nd-141

Nd-141 zerfällt mit 2,62 h Halbwertszeit zu 3,8 % unter Emission von 0,79 MeV Positronen und zu 96,2 % durch Elektroneneinfang in das stabile Pr-141. Dabei wird mit niedrigem Anteil γ -Strahlung von 1,15 MeV (2,5 %) und 1,3 MeV (1,5 %) emittiert (siehe Abbildung 14).

Zur quantitativen Bestimmung eignete sich sowohl die von der Positronenstrahlung herrührende 0,51 MeV Vernichtungsstrahlung als auch die γ -Strahlung. Dabei waren jedoch Störungen durch andere aus Pr-141 und Sauerstoff gebildete Reaktionsprodukte zu erwarten. Um solche Störungen zu vermeiden, wurde Nd vor der Aktivitätsbestimmung mit Hilfe kleiner Ionenaustauschersäulen in ca. 95 min von den anderen Produkten abgetrennt.

Von der Vernichtungsstrahlung ausgehend wurde die Nd-141-Aktivität dadurch bestimmt, daß für jedes Präparat zweimal der Vernichtungspeak im geeichten γ -Spektrometer gemessen wurde:

1. möglichst bald nach Bestrahlungsende ($= F_{p1}$)
2. nach vollständigem Zerfall von Nd-141 ($= F_{p2}$)

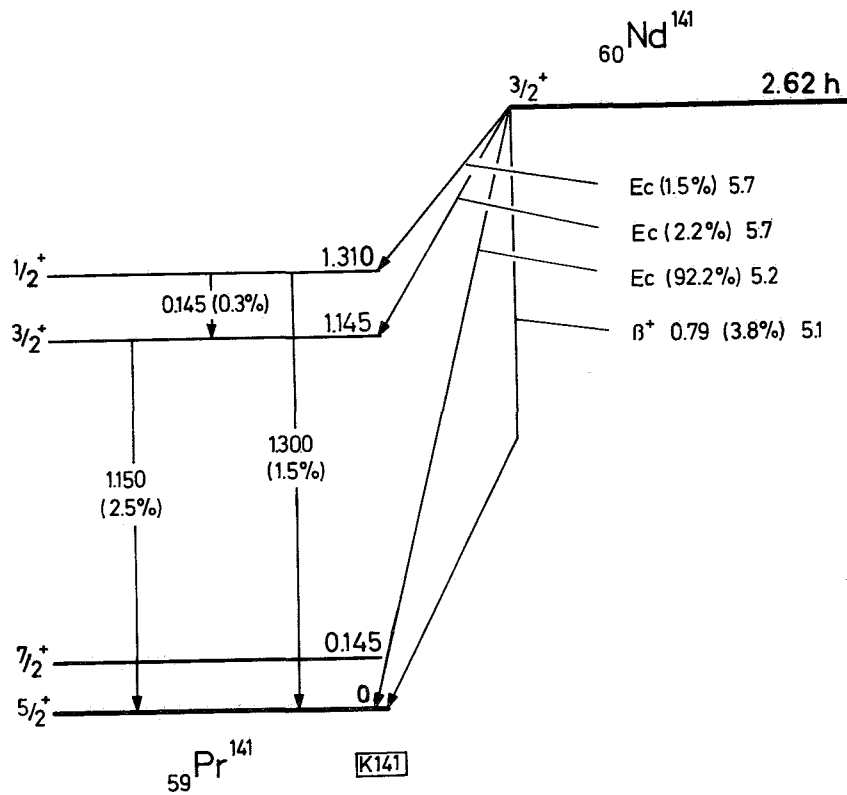


Abb. 14 Zerfallsschema für Nd-141 nach Birjukov und Simanskaya (12)

Aus diesen zwei Meßwerten konnte die Aktivität von Nd-141 bei Bestrahlungsende (= A_0) nach folgender Beziehung berechnet werden:

$$A_0 = \frac{F_{p1} e^{-\lambda_1(t_2-t_1)} - F_{p2}}{e^{-\lambda_1(t_2-t_1)} e^{-\lambda_2 t_1}} \cdot \frac{1}{4,44 \cdot 10^6 f_a U t_m} \quad (\mu\text{Ci}) \quad (26)$$

Darin bedeuten:

- F_{p1} und F_{p2} = exp. Fotopeakflächen (Imp)
- t_1 und t_2 = Zeit der 1. bzw. 2. Messung ab Bestrahlungsende
- λ_1 = Zerfallskonstante für Nd-140
- λ_2 = Zerfallskonstante für Nd-141
- f_a = Häufigkeit der β^+ -Emission (= 0,038)
- U = Fotowirkungsgrad nach Abbildung 4
- t_m = $t_{m1} = t_{m2}$ = Meßdauer (min)

Bei dem zweiten Verfahren wurde die Intensität der 1,3 MeV γ -Linie im geeichten Spektrometer gemessen. Die absolute Nd-141-Aktivität ergab sich, unter der Annahme, daß die γ -Linie nicht konvertiert ist, durch die Gleichung:

$$A_o = \frac{F_p}{2,22 \cdot 10^6 f_a U t_m e^{-\lambda_2 t}} \quad (\mu\text{Ci}) \quad (27)$$

f_a = Häufigkeit des γ -Überganges (= 0,015)

Bei der Aufnahme der γ -Spektren wurden die ersten Messungen etwa 3 bis 4, die zweiten 30 bis 50 Stunden nach Bestrahlungsende durchgeführt. Abbildung 15 zeigt typische Spektren zweier γ -Messungen. Das erste Spektrum enthält nur γ -Linien von Nd-141 und Nd-140/Pr-140, aus dem zweiten ist zu ersehen, daß nach der eingelegten Wartezeit Nd-141 nicht mehr nachzuweisen war. Das gleiche Ergebnis konnte aus der mit dem β -Zähler aufgenommenen Abfallskurve eines Parallelpräparates der gleichen Bestrahlung (Abbildung 16) entnommen werden. Die Kurvenanalyse zeigte auch hier nur die Anwesenheit der beiden Nd-Nuklide und die Tatsache, daß ca. 20 Stunden nach Bestrahlungsende kein Nd-141 mehr nachweisbar war.

Die nach beiden Methoden ermittelten Wirkungsquerschnitte sind in Abbildung 13 eingezeichnet. Sie umfassen den Energiebereich von ca. 14 bis 24 MeV. Die untere Grenze ist durch die Monitoranregungsfunktion bedingt, die obere durch die Bildung von Nd-139.

Für Deuteronenenergien unter 14 MeV konnten unter den gegebenen Voraussetzungen zwar keine absoluten (d,2n)-Wirkungsquerschnitte bestimmt werden, es war jedoch möglich, Wirkungsquerschnittsverhältnisse für die (d,2n)- und die (d,p)-Reaktion zu ermitteln. Das geschah in der Weise, daß aus bestrahltem $\text{Pr}_{61}^{141}\text{O}$ nach einer einfachen chemischen Aufarbeitung ohne Ionenaustauschertrennung ein Präparat hergestellt wurde, dessen Nd-141-Aktivität etwa 3 Stunden nach Bestrahlungsende im geeichten γ -Spektrometer und dessen Pr-142-Aktivität nach einer Wartezeit von ca. 50 Stunden im geeichten β -Zähler bestimmt wurde. Wie die γ -Spektren und die β -Abfallskurven zeigten, waren in solchen Präparaten nur die beiden interessierenden Radionuklide anwesend. Die Verhältnisse der Wirkungsquerschnitte sind in Abbildung 17 in Abhängigkeit von der Deuteronenenergie dargestellt worden.

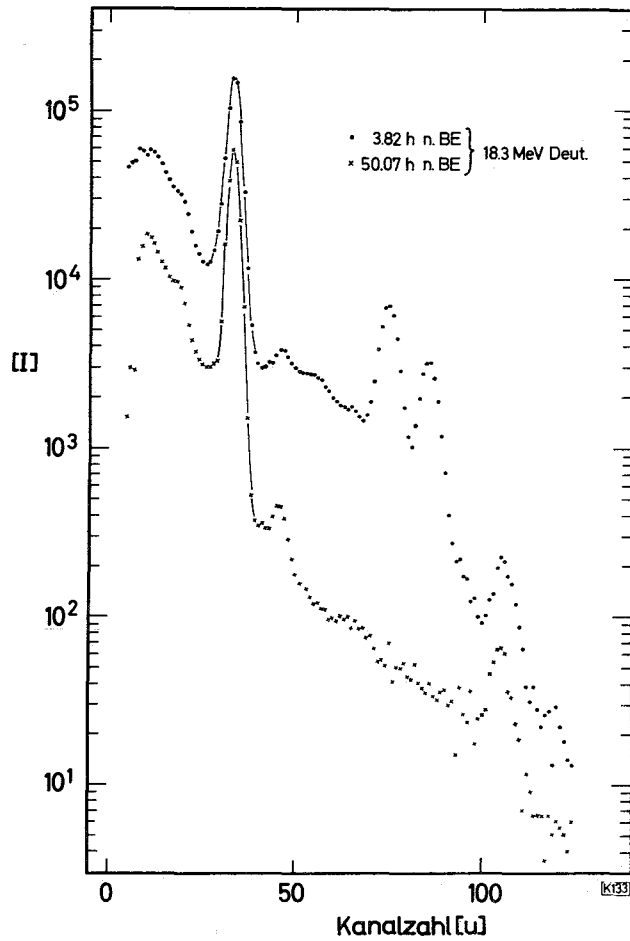


Abb. 15 γ -Spektren zur Bestimmung von Nd-141 (10 min in Pos.5)

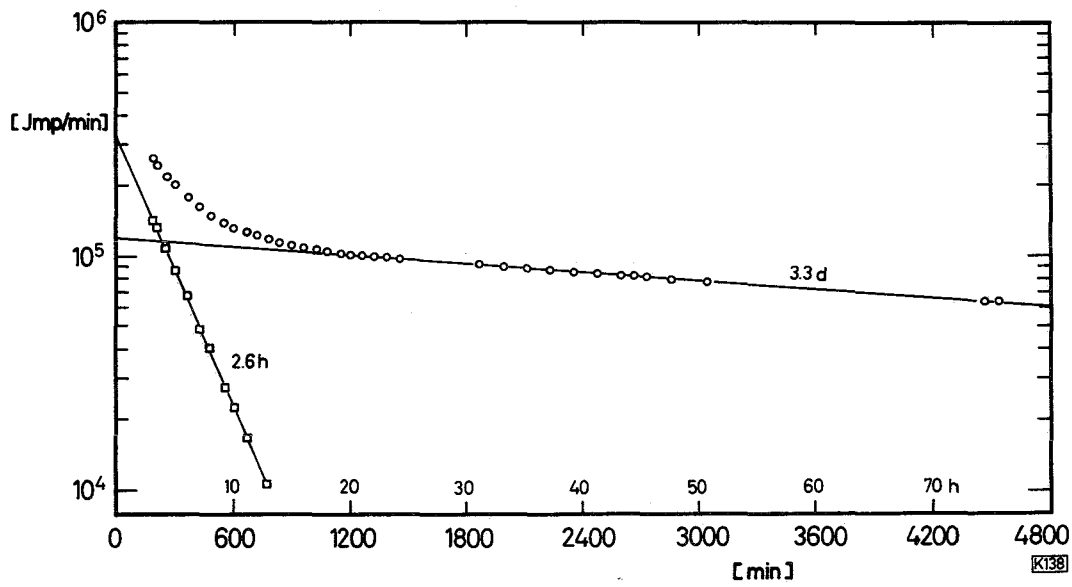


Abb. 16 β -Abfallskurve eines Nd-Präparates zur Bestimmung von Nd-141

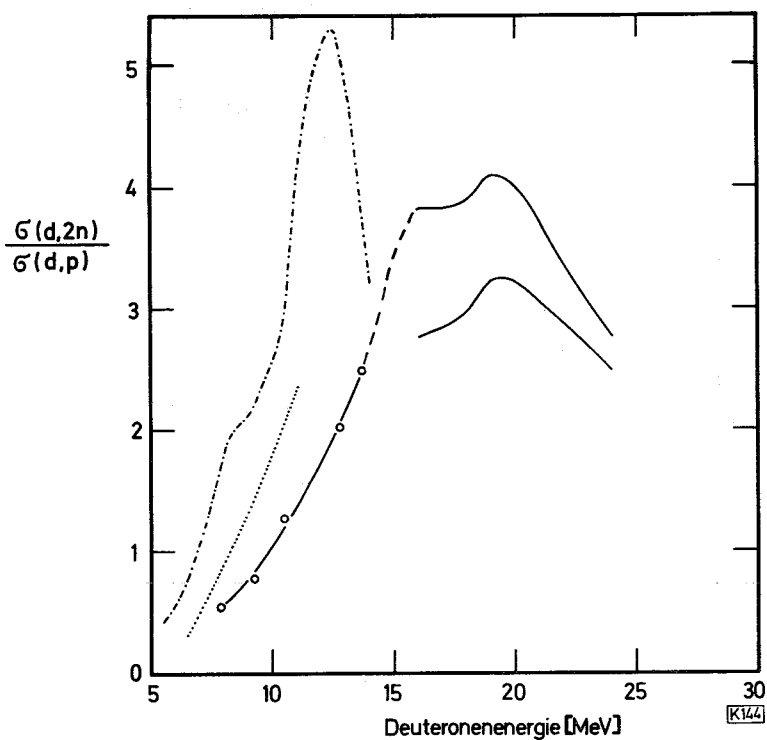


Abb. 17 Wirkungsquerschnittsverhältnisse $\sigma(d,2n)/\sigma(d,p)$ für die Targetkerne Pr-141 und Ce-142

- für Pr-141, gemessener Verlauf
- für Pr-141, extrapoliertes Verlauf
- .-.-.- für Ce-142 nach Otozai et al. (60)
- für Ce-142 nach Bock und Rüdell (65)

Die aus den Anregungsfunktionen für die Bildung von Nd-141 und Pr-142 berechneten Werte wurden mit in die Abbildung aufgenommen.

Unter Verwendung der ab 12 MeV gemessenen Anregungsfunktion für die Bildung von Pr-142 konnten mit Hilfe der Werte aus Abbildung 17 (d,2n)-Wirkungsquerschnitte von 12 bis 14 MeV berechnet werden.

Aus den β -Abfallskurven wurde die Halbwertszeit für Nd-141 mit Hilfe der IBM-7074 berechnet. Als Mittel aus 9 Meßreihen ergab sich ein Wert von

$$2,60 \pm 0,12 \text{ h}$$

2.1.6. Bildung von Nd-139

Nach Abbildung 3 war ab ca. 24 MeV wegen der Bildung von Nd-139 mit Störungen bei der Bestimmung von Nd-141 zu rechnen. Nd-Präparate aus Bestrahlungen mit Deuteronen von ca. 26 und 31 MeV Energie zeigten tatsächlich sowohl in den γ -Spektren als auch in den β -Abfallskurven die Anwesenheit von Nd-139 mit 5,5 h Halbwertszeit. Bei der grafischen Analyse der von der 31 MeV Bestrahlung herrührenden Kurve ergab sich, daß außer den erwarteten Nd-Nukliden der Massenzahlen 139 bis 141 noch eine Aktivität mit ca. 30 min Halbwertszeit anwesend war, die keinem der in Betracht kommenden Nuklide zugeordnet werden konnte. Um näheren Aufschluß über diese unbekannt Aktivität zu erlangen, wurden weitere Bestrahlungen von gereinigtem Pr_6O_{11} mit 30 MeV und 33 MeV Deuteronen ausgeführt. Die Abtrennung des Nd erfolgte dabei nach einem von Bleyl (51) ausgearbeiteten schnellen Ionenaustauschverfahren in ca. 15 min. Von den so erhaltenen Nd-Fractionen wurden

1. eine Reihe von γ -Spektren aufgenommen und
2. der radioaktive Zerfall im β -Zähler verfolgt.

Für beide Bestrahlungen wurden sehr ähnliche Ergebnisse gefunden. Abbildung 18 gibt als Beispiel ein 32 min nach Bestrahlungsende gemessenes γ -Spektrum aus der 33 MeV Bestrahlung wieder. Außerdem enthält sie ein Differenzspektrum mit einem 10 min später aufgenommenen Spektrum sowie ein 499 min nach Bestrahlungsende gemessenes Spektrum, in dem die 30 min Aktivität nicht mehr sichtbar ist. Aus der Reihe der insgesamt 17 γ -Spektren, die in einem Zeitraum bis ca. 1100 min nach Bestrahlungsende gemessen wurden, konnte die Aktivitätsabnahme einzelner Peaks verfolgt werden. Abbildung 19 zeigt als Beispiel die Verhältnisse für den Peak bei ca. 0,41 MeV und den 0,51 MeV Vernichtungspeak. Die grafische Analyse führte für den Anfangsteil beider Kurven zu Halbwertszeiten von ca. 30 min. Nach dem gleichen Verfahren wurden auch die Peaks im Bereich von 0,73 bis 1,42 MeV untersucht. Stets konnte ein geringer Aktivitätsanteil festgestellt werden, der mit einer Halbwertszeit von etwa 30 min abfiel. Dieser 30 min Anteil wurde selbst an Stellen des Spektrums innerhalb des angegebenen Bereiches gefunden, an denen kein Peak sichtbar war.

Als Beispiel für eine Abfallskurve zeigt Abbildung 20 den Abfall des aus der 30 MeV-Bestrahlung gewonnenen Nd-Präparates. Die grafische Analyse gab auch hier deutlich eine Halbwertszeit von ca. 30 min. Unter Verwendung der IBM-7074 wurde aus den β -Messungen ein genauerer Wert für die Halbwertszeit berechnet. Er betrug:

$$29,7 \pm 0,5 \text{ min.}$$

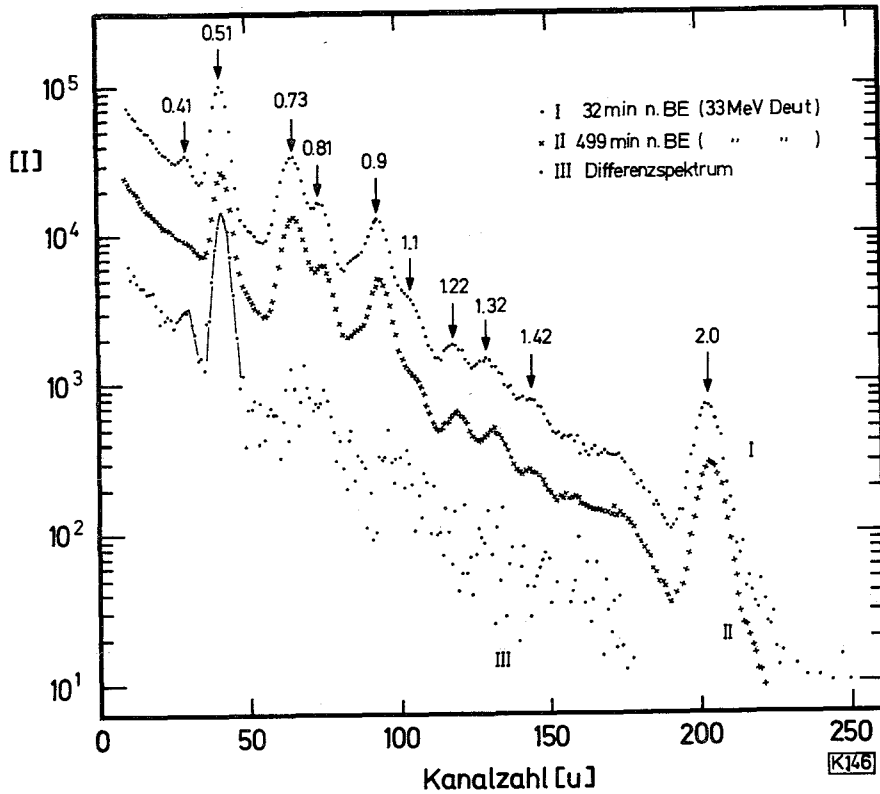


Abb. 18 γ -Spektren der Nd-Fraktion aus einer 33 MeV-Deuteronenbestrahlung (3"·3" NaJ; 8 min Meßzeit; 10 cm Präparatabstand; 1 cm Graphitabdeckung)

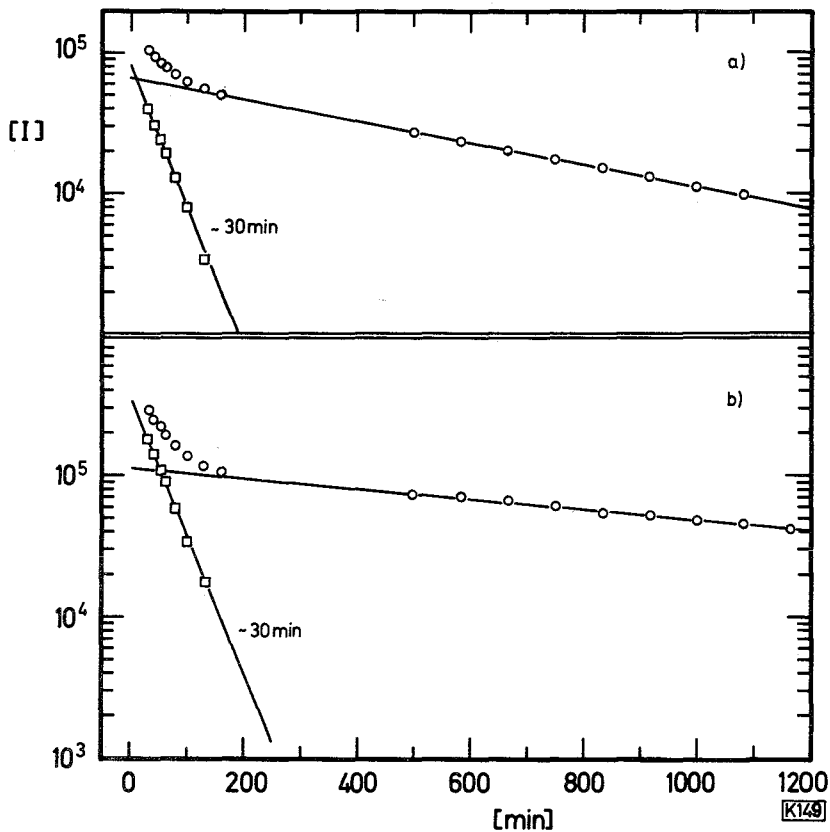


Abb. 19 Aktivitätsabnahme des 0,41 MeV γ -Peaks a) und des 0,51 MeV Vernichtungspeaks b)

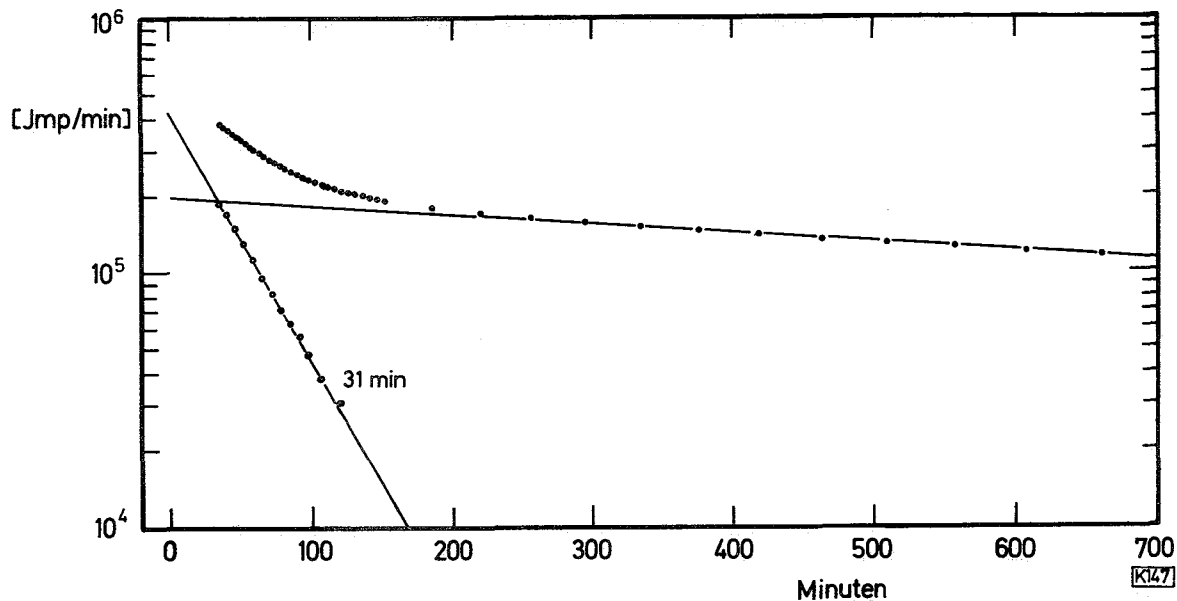


Abb. 20 β -Abfallskurve eines Nd-Präparates mit kurzlebiger Komponente

2.1.7. Fehlerabschätzung für die gemessenen Wirkungsquerschnitte

Bei dem Versuch, den Fehler abzuschätzen, mit dem die ermittelten Wirkungsquerschnitte behaftet sind, muß man davon ausgehen, daß jeder Wirkungsquerschnitt nur einmal gemessen wurde. Der Fehler, der einem solchen Wert zukommt, kann dadurch ermittelt werden, daß man versucht, die zufälligen und systematischen Fehler aller Einzelgrößen, die in den Wirkungsquerschnitt eingehen, möglichst zuverlässig abzuschätzen und zum Gesamtfehler zu kombinieren. Dabei müssen die im Einzelfall angewandten Meßverfahren und dabei gegebene spezielle Bedingungen berücksichtigt werden. Grundlage für ein solches Verfahren bildet Gleichung 14), in der σ als Funktion von A , A_M , σ_M , dem Verhältnis n_M/n ($= L$) und t auftritt. Bezeichnet man die absoluten Fehler der Größen A , A_M usw. als ΔA , ΔA_M usw., so kann man den absoluten Fehler des Wirkungsquerschnittes σ nach dem Taylorschen Satz über folgende Beziehung berechnen:

$$\Delta\sigma = \pm \left(\left| \frac{\partial\sigma}{\partial A} \Delta A \right| + \left| \frac{\partial\sigma}{\partial A_M} \Delta A_M \right| + \left| \frac{\partial\sigma}{\partial \sigma_M} \Delta \sigma_M \right| + \left| \frac{\partial\sigma}{\partial L} \Delta L \right| + \left| \frac{\partial\sigma}{\partial t} \Delta t \right| \right) \quad (28)$$

Gleichung 28) setzt voraus, daß die absoluten Fehler ΔA usw. klein sind gegenüber den Meßwerten A usw., so daß die höheren Potenzen von ΔA usw. in der Taylorreihe vernachlässigt werden können. Addiert man die einzelnen Ausdrücke der Gleichung 28) unabhängig von ihren Vorzeichen, so stellt $\Delta\sigma$ den absoluten Größtfehler dar, der im ungünstigsten Fall zu erwarten ist, wenn alle Fehler im gleichen Sinne wirken (52).

Übersichtlicher ist es, den relativen Größtfehler von σ ($= \frac{\Delta\sigma}{\sigma}$) zu betrachten, der durch folgenden Ausdruck dargestellt wird:

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} = \frac{\Delta A}{A} + \frac{\Delta A_M}{A_M} + \frac{\Delta\sigma_M}{\sigma_M} + \frac{\Delta L}{L} + \left| \left(\lambda_M \frac{e^{-\lambda_M t}}{1 - e^{-\lambda_M t}} - \lambda \frac{e^{-\lambda t}}{1 - e^{-\lambda t}} \right) \right| \Delta t \quad 29)$$

Für A, A_M , σ_M und L addieren sich die jeweiligen relativen Fehler, während der Ausdruck für den Anteil des Fehlers der Bestrahlungsdauer t komplizierter zusammengesetzt ist. Für die hier durchgeführten Bestrahlungen war der aus Δt resultierende relative Größtfehler kleiner als $\pm 0,1 \%$.

Die absoluten Aktivitäten A und A_M sind auf das Bestrahlungsende bezogen. Die Messungen zur Ermittlung der beiden Größen erfolgten jedoch zu einem späteren Zeitpunkt. Der Anteil für den relativen Größtfehler von σ , der sich durch eine fehlerhafte Bestimmung der Zeitspanne t^x zwischen Bestrahlungsende und Messung ergibt, beträgt

$$|(\lambda - \lambda_M)| \Delta t^x$$

Er ist also unabhängig von t^x selbst. Es wird geschätzt, daß der aus Δt^x resultierende relative Größtfehler kleiner als $\pm 0,1 \%$ ist.

Die Fehler von A und A_M sind von einer Anzahl mehr oder weniger gut übersehbarer Größen und Einflüsse abhängig, die im folgenden betrachtet werden sollen. Bei den β -Messungen dürfte der Fehler im wesentlichen der Quadratwurzel aus den gezählten Impulsen entsprechen. Für die hier ausgeführten Messungen ergaben sich Fehler, die kleiner als $\pm 0,4 \%$ waren.

Zur Abschätzung des bei γ -Messungen zu erwartenden Größtfehlers wurde von der Voraussetzung ausgegangen, daß der Logarithmus des Wirkungsgrades linear von dem Logarithmus der γ -Energie abhängt (33, 34, 35). Die experimentellen Ergebnisse der Eichmessungen für das γ -Spektrometer wurden einem solchen funktionalen Zusammenhang angepaßt (siehe Abbildung 4). Für die dabei auftretenden Abweichungen der experimentellen Werte von den Geraden ergaben sich folgende Werte:

$$\begin{aligned} \text{Größte Einzelabweichung (} \sim \text{Größtfehler)} &: \pm 13 \% \\ \text{Mittlerer Fehler der Einzelmessung}^*) &: \pm 4,8 \% \end{aligned}$$

*) berechnet nach: $\sqrt{\frac{\sum (\text{Abweich. i. \%})^2}{n - 1}}$ (für n = 56)

In diesen Fehlerangaben sind enthalten:

1. Fehler der vorausgegangenen Absoluteichung
2. Fehler der Präparatherstellung
3. Meßfehler
4. Fehler der Auswertung der γ -Spektren
5. Fehler der verwendeten Zerfallsdaten

Angaben über die Reproduzierbarkeit von γ -Messungen wurden bereits in Abschnitt 2.1.2.2. gemacht. Für die in Tabelle 7 wiedergegebenen Werte betrug der mittlere Fehler der Einzelmessung $\pm 0,43 \%$, dagegen die aus der Zerfallsstatistik resultierende einfache Standardabweichung $\pm 0,29 \%$.

Soweit Ausbeutebestimmungen erforderlich waren, mußten die dabei auftretenden Fehler für die Bestimmung von A bzw. A_M berücksichtigt werden. Für die in Abschnitt 2.1.2.5. erwähnten Titrationsen betrug

die größte Einzelabweichung: $\pm 0,3 \%$
der mittlere Fehler der Einzelbestimmung: $\pm 0,2 \%$

Bei Pr-Bestimmungen ist mit einem zusätzlichen Anteil von maximal - 1 % zu rechnen.

Die bisher betrachteten Fehler geben kein vollständiges Bild. So sollten bei der Abschätzung neben systematischen Fehlern z.B. für die mittleren Projektilenergien auch die Abweichungen berücksichtigt werden, die auf die Verteilung der Projektilenergien um ihren Mittelwert zurückzuführen sind. Die Breite der Energieverteilung des ursprünglich nahezu monoenergetischen Projektilstrahles^{*)} nimmt mit der Abbremsung merklich zu. Angaben über die Breite der Energieverteilung bei der Abbremsung in Abhängigkeit von der abgebremsten Energie liegen nicht vor, so daß es nicht möglich ist, quantitative Aussagen über den Einfluß der Energiestreuung zu machen. Ein Hinweis darauf, daß dieser Effekt nach starker Abbremsung der Deuteronen deutlich erkennbar ist, ergibt sich aus der Diskussion der $(d,3n)$ -Wirkungsquerschnitte in Abschnitt 2.3.2.4.

Berücksichtigt man nur die angegebenen Werte, so ergibt sich daraus ein Größtfehler von ca. $\pm 35 \%$. Eine vorsichtige Abschätzung des mittleren Fehlers (Standardabweichung) für die gemessenen Wirkungsquerschnitte führte zu einem Wert von $\pm 15 \%$. Dieser Fehlerbereich wurde für alle (d,p) -

*) Es wird geschätzt, daß die Energieunschärfe des nicht abgebremsten Deuteronenstrahls ca. $\pm 0,2$ MeV beträgt.

und (d,3n)-Wirkungsquerschnitte in den Abbildungen 9 und 13 dargestellt. Man erkennt, daß etwa 71 % aller Werte mit ihrem Fehlerbereich die Kurven berühren. Daraus kann gefolgert werden, daß die geschätzte Standardabweichung etwas zu hoch ist.

2.2. Ausbeuten für die Bestrahlung dicker Targets

Die bei der Bestrahlung dicker Targets entstehende Aktivität (Dicke-Target-Ausbeute DTA) konnte aus den Anregungsfunktionen unter Berücksichtigung der Energie-Reichweitebeziehung berechnet werden. Ausgegangen wurde dabei von Gleichung 6), die nur für eine diskrete Projektilenergie gilt. Bei der Bestrahlung dicker Targets verlieren die Projektile im Target Energie. Daher mußte die Energieabhängigkeit von σ berücksichtigt werden. Außerdem mußte anstelle von N die für das Energieintervall dE vorhandene Zahl von Targetatomen dN eingesetzt werden, so daß Gleichung 6) in differentieller Form galt.

$$dA = \sigma(E) \phi (1 - e^{-\lambda t}) dN \quad 30)$$

Für ein Target, in der die Projektilenergie von E_2 auf E_1 vermindert wird, ergibt sich

$$A = \phi (1 - e^{-\lambda t}) \int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) dN \quad 31)$$

Berücksichtigt man, daß

1. die Energie-Reichweitebeziehung in begrenzten Energieintervallen E_1 bis E_2 durch eine lineare Gleichung dargestellt werden kann,
 2. einem Deuteronenstrom von 1 μA ein Projektilfluß von $6,24 \cdot 10^{12}$ Deuteronen pro sec entspricht,
 3. die Targetsubstanz Pr-141 war,
- so erhält man für die DTA in $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ folgende Beziehung:

$$\left[\text{DTA} \right]_{E_1}^{E_2} = 7,2 \cdot 10^2 (1 - e^{-\frac{t}{T} \ln 2}) \frac{Rw_2 - Rw_1}{t(E_2 - E_1)} \int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) dE \quad 32)$$

Rw = Deuteronenreichweite in Pr-141 in g/cm^2

Bestrahlungszeit t und Halbwertszeit T in h

Wirkungsquerschnitt σ in mb

Hier wurden DTA für die Fälle berechnet, daß

1. die Bestrahlungszeit kurz ist gegenüber der Halbwertszeit (DTAK)
2. die Bestrahlungszeit so groß ist, daß praktisch Sättigungsaktivität erreicht wird (DTAL)

Verwendet man kurze Bestrahlungszeiten, so kann der in Klammern stehende Ausdruck von Gleichung 32) durch die Näherung $\frac{t}{T} \ln 2$ ersetzt werden. Gleichung 32) ändert sich dann in:

$$\left[\text{DTAK} \right]_{E_1}^{E_2} = 5,0 \cdot 10^2 \frac{Rw_2 - Rw_1}{T(E_2 - E_1)} \int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) dE \left(\frac{\mu\text{Ci}}{\mu\text{Ah}} \right) \quad 33)$$

Wenn z.B. $\frac{t}{T} < 0,15$ ist, hat man bei Verwendung von Gleichung 33) mit einem Fehler von weniger als 5 % zu rechnen. Wählt man sehr große Bestrahlungszeiten, so nähert sich der Klammerausdruck von Gleichung 32) dem Wert 1 und man erhält die vereinfachte Beziehung:

$$\left[\text{DTAL} \right]_{E_1}^{E_2} = 7,2 \cdot 10^2 \frac{Rw_2 - Rw_1}{E_2 - E_1} \int_{E_1}^{E_2} \sigma(E) dE \left(\frac{\mu\text{Ci}}{\mu\text{A}} \right) \quad 34)$$

Es ist zu beachten, daß DTAK in $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$ und DTAL in $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}$ angegeben wird.

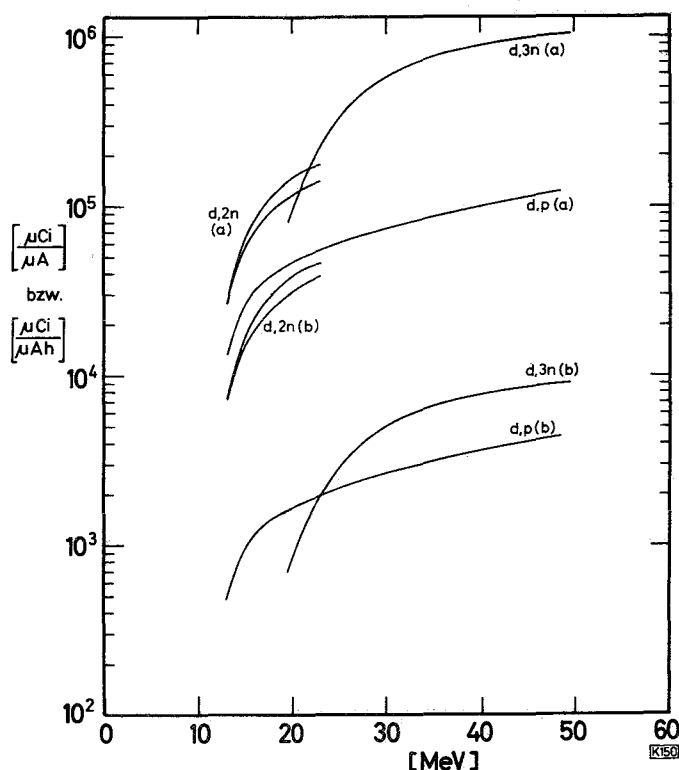


Abb. 21

Dicke-Target-Ausbeuten

- (a) berechnet nach Gl.34) in $\mu\text{Ci}/\mu\text{A}$
 (b) berechnet nach Gl.33) in $\mu\text{Ci}/\mu\text{Ah}$

Für die gemessenen Bereiche der drei Anregungsfunktionen wurden die Werte nach Gleichung 33) und Gleichung 34) in Schritten von je 3 MeV für die (d,p)- und die (d,3n)-Reaktionen und in 2 MeV-Schritten für die (d,2n)-Reaktion berechnet. Als Energie-Reichweitebeziehung dienten für Pr-141 interpolierte Werte aus den Tabellen von Williamson und Boujot (53). Die Integration der Wirkungsquerschnitte erfolgte auf grafischem Wege. Die Ergebnisse wurden schrittweise addiert und ergaben so die in Abbildung 21 dargestellten Kurven.

2.3. Diskussion der Ergebnisse

2.3.1. Zerfallsdaten

2.3.1.1. Halbwertszeiten für Nd-140, Nd-141 und Pr-142

In Tabelle 9 sind die in dieser Arbeit bestimmten Halbwertszeiten den von anderen Autoren ermittelten Werten gegenübergestellt worden. Man erkennt, daß für Nd-140 ein genauerer Wert ermittelt werden konnte. Er stimmt innerhalb des Fehlerbereiches mit der bisher bekannten Halbwertszeit überein.

Tabelle 9 Halbwertszeiten der untersuchten Nuklide

Nuklid	Halbwertszeit	Literatur
Nd-140	$3,37 \pm 0,02$ d	diese Arbeit
	$3,3 \pm 0,1$ d	(54)
Nd-141	$2,60 \pm 0,12$ h	diese Arbeit
	$2,42 \pm 0,05$ h	(54)
	$2,5 \pm 0,3$ h	(55)
	$2,62 \pm 0,17$ h	(12)
	$2,42 \pm 0,09$ h	(56)
Pr-142	$19,09 \pm 0,07$ h	diese Arbeit
	$19,3 \pm 0,1$ h	(57)
	19,1 h	(58)
	19 ± 1 h	(55)
	$19,2 \pm 0,1$ h	(59)
	$19,14 \pm 0,05$ h	(60)

Für Nd-141 waren Werte zwischen 2,42 h und 2,62 h bekannt. Die in dieser Arbeit gefundene Halbwertszeit stimmt am besten mit der von Birjukov und Simanskaya (12) überein, deren Wert für die hier durchgeführten Auswertungen verwendet worden war.

Die genaueste Angabe über die Halbwertszeit des Pr-142 stammt von Otozai et al. (60). Der in dieser Arbeit ermittelte Wert stimmt damit gut überein.

2.3.1.2. Zerfallseigenschaften eines neuen Nd-139-Isomers

Über die Eigenschaften der Aktivität mit 29,7 min Halbwertszeit kann auf Grund der Versuchsergebnisse folgendes gesagt werden: Aus den Spektren der Abbildung 18 und aus Abbildung 19 ergibt sich, daß das neue Nuklid unter Emission von Positronen und einer γ -Strahlung von etwa 0,41 MeV zerfällt. Der dem hohen Brems- und Comptonstrahlungsuntergrund aufsitzende 0,41 MeV-Peak verschwindet vollständig mit ca. 30 min Halbwertszeit. Der im Differenzspektrum bei etwa 0,19 MeV sichtbare kleine Peak stellt vermutlich den Rückstreupeak der 0,51 MeV Vernichtungsstrahlung dar. Die bei Energien oberhalb 0,51 MeV gefundenen kurzlebigen Anteile im untersuchten Energiebereich dürften auf Positronenvernichtung im Fluge zurückzuführen sein. Anzeichen für γ -Linien des neuen Nuklides konnten in diesem Bereich nicht gefunden werden.

Diese Aktivität muß aus folgenden Gründen Nd-139 zugeordnet werden:

1. Es wurden die abgetrennten Nd-Fractionen untersucht
2. Die Aktivität entstand durch Kernreaktionen mit Deuteronen, deren Energie oberhalb der Schwelle für die Bildung von Nd-139 aber unter der Schwelle für Nd-138 lag.

Die Existenz eines Nd-139-Isomers mit einer Halbwertszeit von weniger als 3 h wurde von Gromov et al. (15) vermutet. Das bekannte 5,5 h Nd-139-Isomer stellt nach diesen Autoren einen metastabilen Zustand dar, dessen Zerfall zum größten Teil direkt zu Pr-139 Niveaus führt. Es dürfte sich daher bei der hier gefundenen 29,7 min-Aktivität um den Grundzustand des Nd-139 handeln.

2.3.2. Wirkungsquerschnitte und Anregungsfunktionen

2.3.2.1. Allgemeine Deutung der ermittelten Anregungsfunktionen

Für einen Targetkern hoher Ordnungszahl, z.B. Pr-141, ist zu erwarten, daß bei niedrigen Deuteronenenergien die (d,p)-Reaktion als Strippingprozeß in Form der Oppenheimer-Phillips-Reaktion dominiert. Tatsächlich zeigt der Verlauf der (d,p)-Anregungsfunktion, daß sich diese Kurve am weitesten in den niederenergetischen Bereich hin erstreckt (Abbildung 22). Mit steigender Projektilenergie ist dagegen zu erwarten, daß die Häufigkeit der Oppenheimer-Phillips-Reaktion auf Kosten der Compoundkernreaktion abnimmt. Die Compoundkernreaktion sollte sich im wesentlichen zunächst in Form der (d,2n)-Reaktion^{*)} und bei höheren Deuteronenenergien als (d,3n)-Reaktion bemerkbar machen. Diese Tendenz wird durch die Anregungsfunktionen der Abbildung 22 sowie durch die Wirkungsquerschnittsverhältnisse der Abbildung 17 gut wiedergegeben.

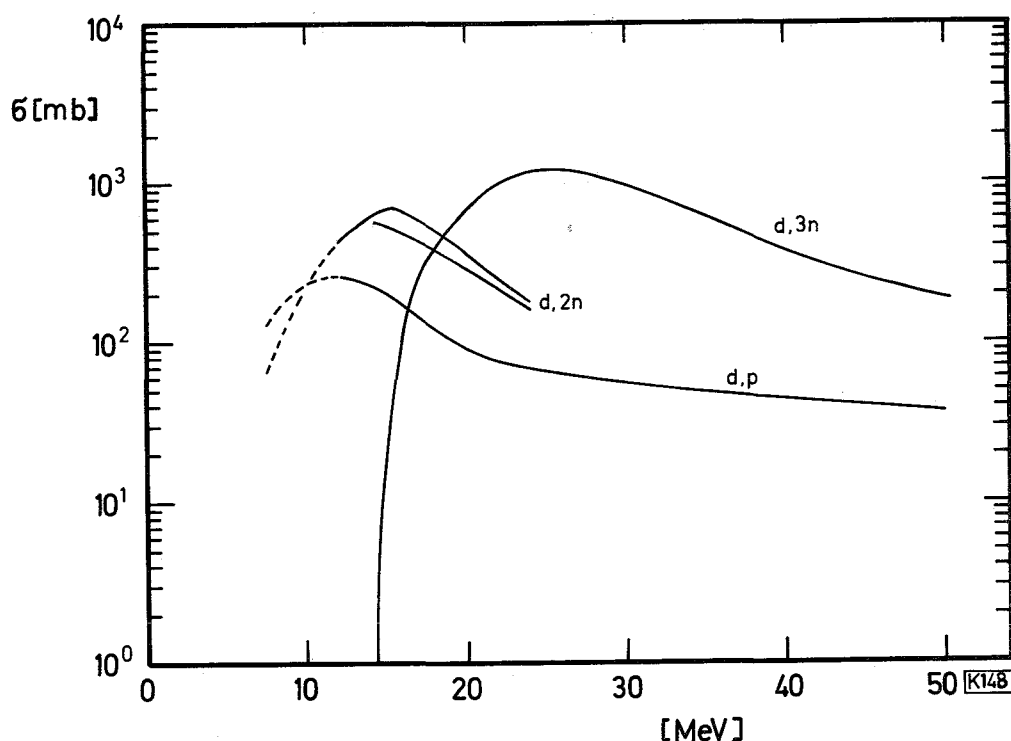


Abb. 22 Zusammenstellung der gemessenen Anregungsfunktionen

----- extrapoliertes Kurvenverlauf gemäß Abschnitt 2.3.2.2.

^{*)} Die Wahrscheinlichkeit für eine (d,n)-Compoundreaktion ist gering, da die Anregungsenergie bei der Absorption eines Deuterons in der Regel ausreicht, um zwei Neutronen zu verdampfen

Für die Abnahme der (d,p)-Reaktion mit steigender Deuteronenenergie gibt es zwei Gründe:

1. Als Konkurrenz zur Oppenheimer-Phillips-Reaktion kommen die Compoundkern- und die (d,n)-Strippingreaktion auf.
2. Bei (d,p)-Stripping-Reaktionen mit Deuteronen hoher kinetischer Energie wird im allgemeinen der verbleibende Kern so stark angeregt, daß er ein oder mehrere Nukleonen (vorwiegend Neutronen) verdampfen kann. Ein solcher Vorgang würde z.B. zu (d,pxn)-Reaktionen führen.

Die (d,2n)-Reaktion, die zu Anfang hauptsächlich über den Compoundmechanismus läuft, erfolgt bei höheren Deuteronenenergien zum Teil in Form eines (d,n)-Stripping-Prozesses mit nachfolgender Verdampfung eines Neutrons. Bei diesen Deuteronenenergien führt die Compoundkernreaktion im allgemeinen schon zur Verdampfung von drei Nukleonen (z.B. (d,3n)-Reaktion).

2.3.2.2. Die (d,p)-Reaktion

Von Baron und Cohen (61) wurde ein Wirkungsquerschnitt für die (d,p)-Reaktion gemessen. Die Autoren fanden für eine Deuteronenenergie von 19,7 MeV einen Wert von $89 \text{ mb} \pm 15 \%$. Der hier ermittelte Wirkungsquerschnitt für die gleiche Energie stimmt gut damit überein. Er beträgt 92 mb.

Moeken (62) hat (d,p)-Anregungsfunktionen für Targetkerne von Be-9 bis Bi-209 verglichen und versucht, gemeinsame Eigenschaften herauszufinden. So stellte er fest, daß die normierten Peaks der Kurven annähernd die gleiche Form besitzen. Ihre Halbwertsbreite beträgt etwa 10 MeV. Legt man diesen Wert für die Anregungsfunktion dieser Arbeit zu Grunde, so sollte der Wirkungsquerschnitt bei etwa 7,6 MeV ca. 130 mb betragen. Mit Hilfe des Wirkungsquerschnittsverhältnisses aus Abbildung 17 würde für die gleiche Energie ein (d,2n)-Wirkungsquerschnitt von etwa 65 mb resultieren. Aus Abbildung 17 ist außerdem zu erkennen, daß sich die (d,p)- und die (d,2n)-Kurven bei etwa 10 MeV schneiden. Unter Verwendung dieser Angaben wurden die (d,p)- und die (d,2n)-Kurven bis hinab zu etwa 7,6 MeV extrapoliert. Der angenommene Verlauf ist in Abbildung 22 gestrichelt gezeichnet.

In einer Kurve gibt Moeken die Energielage der Maxima der Anregungsfunktionen in Abhängigkeit von der Ordnungszahl der Targetkerne wieder. Für Pr-141 ergibt sich danach ein Wert von ca. 12 MeV. Der Verlauf der ab 12 MeV gemessenen (d,p)-Anregungsfunktion deutet auf eine gute Übereinstimmung mit dieser Angabe hin.

Werte für die Maxima der Anregungsfunktionen in Abhängigkeit von der Ordnungszahl können aus einer anderen von Moeken gefundenen Kurve abgeschätzt werden. Danach sollte für die hier betrachtete (d,p)-Reaktion etwa 190 mb erwartet werden. Tatsächlich wurde jedoch ein Wert von 260 mb bei 12 MeV gefunden. Diese Diskrepanz rührt möglicherweise daher, daß die Moeken'sche Kurve insgesamt zu niedrige Werte wiedergibt. Einen Hinweis darauf, daß größere σ -Werte angenommen werden müssen, liefern Otozai et al. (60), die für die (d,p)-Reaktion mit Ce-142 als Targetkern einen Maximalwert von 230 ± 20 mb fanden.

2.3.2.3. Die (d,2n)-Reaktion

Für die (d,2n)-Reaktion wurden für beide Meßverfahren verschiedene Wirkungsquerschnitte gefunden, die offensichtlich systematisch voneinander abweichen. Aus Abbildung 13 ist zu ersehen, daß die nach Gleichung 26) über die Vernichtungsstrahlung gefundenen Werte alle größer sind als die nach Gleichung 27) über die 1,3 MeV γ -Strahlung ermittelten. Der mittlere Quotient aus zusammengehörigen Wirkungsquerschnitten beträgt:

$$\frac{\sigma(0,51 \text{ MeV})}{\sigma(1,3 \text{ MeV})} = 1,28$$

Nimmt man an, daß die 1,3 MeV γ -Strahlung nicht konvertiert ist und bei der Bestimmung der absoluten Aktivitäten kein systematischer Fehler aufgetreten ist, durch den die Abweichungen erklärt werden können, so müssen die Häufigkeiten für die Emission der 1,3 MeV γ -Strahlung ($= f_\gamma$) oder/und die Positronenemission ($= f_{\beta^+}$) andere Werte besitzen. Es muß dann gelten:

$$\frac{f_\gamma}{f_{\beta^+}} = 0,308$$

statt des Wertes 0,395, der sich aus den Daten von Birjukov und Simanskaya (12) ergibt. Literaturangaben (12, 56, 63, 64) über die Häufigkeiten der 1,3 MeV γ -Strahlung und der β^+ -Emission variieren stark. Sie umfassen für die 1,3 MeV γ -Strahlung Werte von 0,26 bis 1,5 %, für die β^+ -Strahlung Werte von 1,9 bis 3,8 %. Es war daher nicht möglich, einen Anhalt dafür zu finden, welchen Wirkungsquerschnitten die größere Wahrscheinlichkeit zukommt.

2.3.2.4. Die (d,3n)-Reaktion

Aus Abbildung 9 ist ersichtlich, daß auch unterhalb der Reaktionsschwelle noch Nd-140 gebildet wurde. Die beiden Werte bei 7,0 und 10,4 MeV entstammen zwei verschiedenen Bestrahlungen. Sie wurden jeweils aus den letzten Folienbriefen von "stacked foil" Anordnungen gewonnen, die für den 7 MeV-Wert im normalen Innenstrahl (insgesamt 3 Briefe), für den 10,4 MeV-Wert im ausgelenkten Innenstrahl (insgesamt 6 Briefe) bestrahlt worden waren.

Bei den gemessenen Aktivitäten konnte es sich nur um Nd-140 handeln, weil

1. die mit großen Säulen abgetrennten Nd-Fractionen verwendet wurden und
2. die Messungen 130 bzw. 158 h nach Bestrahlungsende über den Vernichtungsspeak erfolgten. In dieser Zeitspanne dürften alle anderen in Betracht kommenden Positronenstrahler auf unmeßbare Anteile abgefallen sein.

Die Entstehung von Nd-140 auf einem anderen Wege als über die betrachtete Reaktion dürfte nicht möglich sein. Durch geringfügige Nd-Verunreinigungen des Targetmaterials z.B. könnte Nd-140 nur durch (d,p3n)- bzw. (n,3n)-Reaktion aus Nd-142 entstehen. Diese Reaktionen sind jedoch auf Grund der Q-Werte ($< - 17$ MeV) nicht möglich.

Für die scheinbare Bildung von Nd-140 unterhalb der Reaktionsschwelle sind zwei Erklärungen möglich:

1. Bei der Abbremsung von Deuteronen tritt eine mit dem Grad der Abbremsung zunehmende Energiestreuung auf. Der für einen definierten Ort im Folienpaket mit Hilfe der Energie-Reichweitebeziehung berechnete Energiewert stellt daher tatsächlich nur den Mittelwert eines endlichen Energiebereiches dar, der an der betrachteten Stelle wirksam ist. Die Energiestreuung wird sich besonders dann bemerkbar machen, wenn
 - a) eine starke Abbremsung der Projektile stattgefunden hat und
 - b) sich die Wirkungsquerschnitte stark mit der Energie ändern.Beide Voraussetzungen sind für die zur Diskussion stehenden Wirkungsquerschnitte erfüllt.
2. Eine andere Erklärung ergibt sich aus der Möglichkeit, daß Deuteronen an den Oberkanten der Folien gestreut wurden. Dadurch könnten Teilchen höherer Energie in weiter zurückliegende Briefe gelangt sein.

Von beiden Deutungen kommt der ersten die größere Wahrscheinlichkeit zu. Gegen die zweite spricht, daß der Effekt auch für den ausgelenkten Innenstrahl auftritt, bei dem wegen der anderen Strahllage keine Kantenstreuung stattfinden kann.

2.3.2.5. $(d,2n)/(d,p)$ -Wirkungsquerschnittsverhältnisse

In Abbildung 17 sind zum Vergleich Wirkungsquerschnittsverhältnisse für den Targetkern Ce-142 mitaufgenommen worden, die aus experimentellen Daten von Otozai et al. (60) und von Bock und Rüdel (65) berechnet wurden. Man erkennt, daß der Verlauf der drei Kurven abgesehen von der Energie-lage ähnlich ist. Der Unterschied zwischen den beiden Ce-142-Kurven ist möglicherweise auf systematische Abweichungen bei der Energiebestimmung zurückzuführen. Das bis zu einem Wert von etwa 5,3 ansteigende Verhältnis bei Otozai et al. ist dadurch bedingt, daß die (d,p) -Anregungsfunktion überraschenderweise bei etwa 12,5 MeV ein Minimum zwischen zwei Maxima enthält. Wäre dieses Minimum nicht vorhanden, so würden auch die Maximalwerte der Wirkungsquerschnittsverhältnisse für Ce-142 und Pr-141 gut übereinstimmen.

Der wesentliche Unterschied zwischen den Kurven für Pr-141 und Ce-142 besteht darin, daß die Pr-141 Kurve im Mittel um etwa 2 bis 3 MeV zu höheren Energien hin verschoben ist. Man kann diesen Unterschied qualitativ deuten, wenn man berücksichtigt, daß Pr-141 eine magische Neutronenzahl besitzt. Die dadurch bedingte größere Stabilität kommt z.B. in den Q-Werten für die $(d,2n)$ -Reaktion zum Ausdruck. Für Pr-141 ist dieser Q-Wert um ca. 1 MeV kleiner als für Ce-142. Deshalb sollte die Anregungsfunktion für die Pr-141 $(d,2n)$ -Reaktion nach höheren Deuteronenenergien hin verschoben sein und dementsprechend ebenfalls das Wirkungsquerschnittsverhältnis.

2.3.2.6. Abschätzung von Wirkungsquerschnitten

In Abbildung 23 wurden die Anregungsfunktionen nicht gegen die Deuteronenenergie, sondern gegen die Summe aus der Deuteronenenergie und dem Q-Wert aufgetragen. Diese Energie entspricht bei Compoundkernreaktionen der Anregungsenergie. Die Darstellung zeigt, daß die $(d,2n)$ - und die (d,p) -Anregungsfunktionen für die beiden verschiedenen Targetkerne Pr-141 und Ce-142 ähnlich verlaufen. Die Ähnlichkeit der Kurven ist überraschend, da einer der Targetkerne neutronenmagisch ist. Man kann daher erwarten, daß auch andere benachbarte Nuklide einen entsprechenden Kurvenverlauf zeigen. Trifft diese Vermutung zu, so ist es möglich, unbekannte $(d,2n)$ - und (d,p) -Wirkungsquerschnitte abzuschätzen. Voraussetzung dafür ist, daß man den Q-Wert kennt bzw. aus Massewerten berechnen kann.

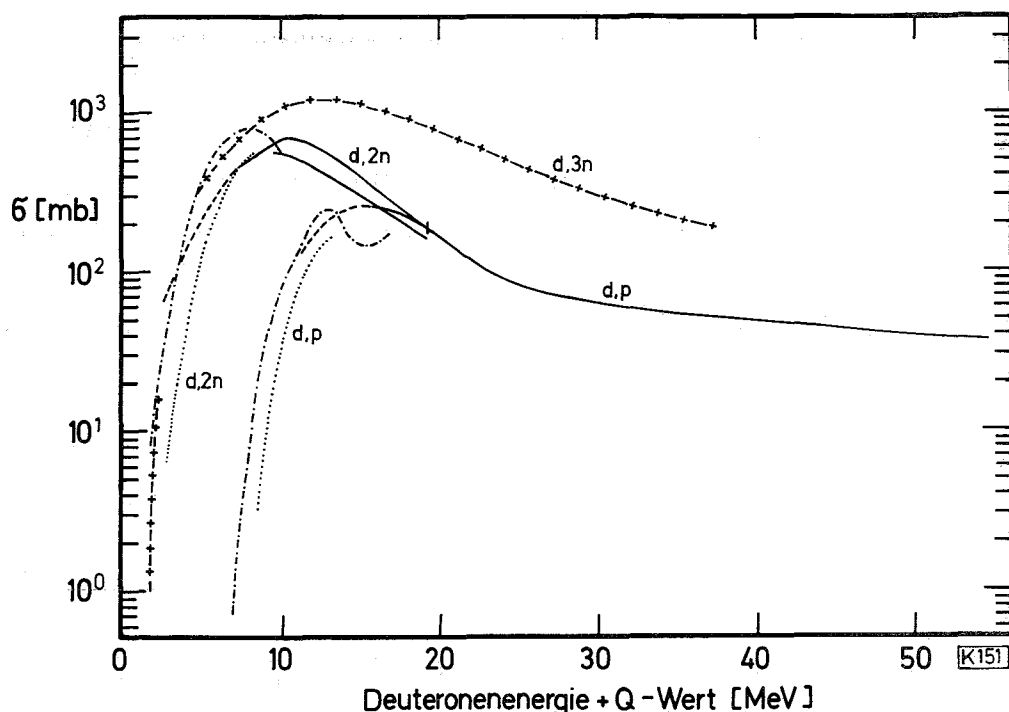


Abb. 23 Vergleich von Pr-141- und Ce-142-Anregungsfunktionen

- für Pr-141
- - - - für Pr-141, extrapoliertes Verlauf
- + - + - + für Pr-141 (d,3n)*)
- für Ce-142 nach Bock und Rüdell (65)
- - - - - für Ce-142 nach Otozai et al. (60)

Aus Abbildung 23 ist weiterhin ersichtlich, daß die (d,3n)- und (d,2n)-Anregungsfunktionen in ihrem Anfangsteil praktisch vollständig übereinstimmen. Das läßt sich dadurch erklären, daß beide Reaktionen vorwiegend nach dem gleichen Mechanismus als Compoundkernreaktion ablaufen.

Mit diesen allgemeinen Anregungsfunktionen ist es auch möglich, Ausbeuten für die Bestrahlung dicker Targets abzuschätzen. Vernachlässigt man dabei den Unterschied in der Massenzahl im Vergleich zu Pr-141 sowie die Unterschiede in der Energie-Reichweitebeziehung, so kann man die Kurven der Abbildung 21 benutzen. Dabei muß jedoch berücksichtigt werden, daß auf der Abszisse statt der Deuteronenenergie die Summe aus Deuteronenenergie und Q-Wert einzusetzen ist. Für die nach Gleichung 33) berechneten Kurven sind Unterschiede in den Halbwertszeiten zu berücksichtigen.

*) Ein Teil der (d,3n)-Anregungsfunktion ist mit der (d,2n)-Kurve von Otozai et al. identisch. Der besseren Übersicht wegen wurde dieser (d,3n)-Verlauf nicht mit gezeichnet.

2.3.3. Beurteilung der VM-Methode zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten

Aus der Fehlerabschätzung (Abschnitt 2.1.7.) geht hervor, daß die VM-Methode im Vergleich mit der gebräuchlichen Monitormethode Fehler ähnlicher Größe besitzt. Das ist dadurch zu erklären, daß bei beiden Verfahren die den Gesamtfehler bildenden Einzelkomponenten übereinstimmen. In beiden Fällen wird der Fehler unter anderem durch das Verhältnis n_M/n bzw. N_M/N bestimmt, bei der gebräuchlichen Methode in Form des Verhältnisses der Dicken von Monitor- und Targetschicht, bei der VM-Methode als atomares Mischungsverhältnis beider Substanzen. Verwendet man als TM-Mischung eine chemische Verbindung, so ist dank der Stöchiometrie das n_M/n -Verhältnis in der Regel ideal definiert und damit der dafür in Betracht zu ziehende Fehler vernachlässigbar klein. Nicht vernachlässigt werden kann er dagegen bei dem üblichen Monitorverfahren, bei dem stets mit endlichen Fehlern für die Schichtdicken zu rechnen ist. Unter sonst vergleichbaren Bedingungen liefert demnach die VM-Methode bei Verwendung chemischer TM-Verbindungen genauere Resultate.

2.4. Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden (d,p)-, (d,2n)- und (d,3n)-Wirkungsquerschnitte für den Targetkern Pr-141 unter Verwendung des Innenstrahls des Karlsruher Isochron-Zyklotrons bestimmt. Zur Strommessung diente ein bisher selten angewandtes Monitorverfahren, bei dem Target- und Monitorsubstanz homogen miteinander vermischt waren. Für dieses Verfahren wurden zunächst die Grundlagen aufgezeigt, wobei zum Vergleich auch auf andere Möglichkeiten der Strommessung eingegangen wurde. Ausgehend von den nach diesem Verfahren gemessenen absoluten Wirkungsquerschnitten wurde

1. der Verlauf der Anregungsfunktionen für die betrachteten Kernreaktionen ermittelt und qualitativ gedeutet
2. eine Fehlerabschätzung durchgeführt und daran anknüpfend die VM-Methode mit dem üblichen Monitorverfahren verglichen
3. unter Verwendung der Anregungsfunktionen die Ausbeuten für die Bestrahlung dicker Targets berechnet.

Mit Hilfe der zur Bestimmung von Wirkungsquerschnitten erzeugten Aktivitäten wurden zusätzlich

1. genaue Halbwertszeitbestimmungen der betrachteten Nuklide durchgeführt
2. der bisher unbekannt Grundzustand von Nd-139 gefunden, für den einige Zerfallsdaten ermittelt werden konnten.

Außerdem wurden für Deuteronenenergien, die unterhalb des Anwendungsbereiches der Monitorreaktionen lagen, Wirkungsquerschnittsverhältnisse für die (d,2n)- und (d,p)-Reaktion gemessen.

Ausführlich wurden einige Arbeitsschritte untersucht, deren sorgfältige Durchführung für die Genauigkeit der ermittelten Wirkungsquerschnitte von wesentlicher Bedeutung war. Es handelt sich dabei um

1. Absoluteichung mit dem 4π -Zähler
2. Aktivitätsmessung mit dem geeichten γ -Spektrometer und dem geeichten B-Zähler
3. Trennung von Lanthaniden durch Ionenaustauschchromatografie
4. Ausbeutebestimmung durch komplexometrische Titration.

3. Experimenteller Teil

3.1. Zyklotronbestrahlungen

3.1.1. Deuteronenquelle

Als Deuteronenquelle diente für alle in dieser Arbeit durchgeführten Bestrahlungen das Karlsruher Isochron-Zyklotron (66, 67, 68, 69), mit dem Deuteronen bis auf eine Energie von 50,7 MeV beschleunigt werden konnten. Aus technischen Gründen war nur der Innenstrahl des Zyklotrons verfügbar, mit dem Bestrahlungen auf zweierlei Art durchgeführt wurden:

1. Die Bestrahlung erfolgte auf einer normalen Innenbahn. Dabei konnten in Abhängigkeit von dem Radius, auf den das Target eingefahren wurde, beliebige Deuteronen-Energien bis maximal etwa 50 MeV ausgewählt werden. Im Gegensatz zu anderen Zyklotrons waren die Abstände benachbarter Einzelbahnen in der Karlsruher Maschine klein. Sie betragen je nach Bestrahlungsort 1,7 bis 4,1 mm. Der Teilchenstrahl traf daher auf den oberen Rand des Targets.
2. Die Bestrahlung wurde in dem durch das Septum elektrostatisch ausgelenkten Innenstrahl vorgenommen. Die Deuteronen-Energie hatte hier einen festen Wert von 50,7 MeV. Der Abstand von der vorausgehenden nicht abgelenkten Bahn betrug 15 mm, so daß der Strahl unterhalb der Oberkante voll auf die Targetfläche auftraf.

3.1.2. Targetanordnung

Für alle Bestrahlungen wurde der in Abbildung 24 gezeigte Targetkopf verwendet, in den Metallfolienbriefe mit der zu aktivierenden Substanz eingespannt wurden. Als Briefmaterial diente für PrAlO_3 10 μm Silberfolie, für Pr_6O_{11} 20 μm Aluminiumfolie.

Der ca. 27x12 mm große Folienbrief war durch einfaches Falten und festes Zusammendrücken der Folie hergestellt worden. Er enthielt auf einer etwas vertieften 3x7 mm großen Fläche ca. 1 mg der zu bestrahlenden Substanz möglichst gleichmäßig verteilt. Jeweils zwei bis maximal sechs Folienbriefe wurden unter Verwendung von zwischengelegten Aluminiumblechen definierten Flächengewichts zur Energieminderung zu Folienpaketen kombiniert und fest in den Targetkopf eingespannt. Dabei wurde besonders darauf geachtet, daß sämtliche Oberkanten der im Folienpaket vereinigten Briefe und Bleche eine Ebene bildeten. Es wird geschätzt, daß der Höhenunterschied der ausgerichteten Kanten nicht mehr als 0,1 mm betrug. Durch die genaue Ausrichtung der Oberkanten sollten Energieverfälschungen durch Kantenstreueffekte möglichst klein gehalten werden.

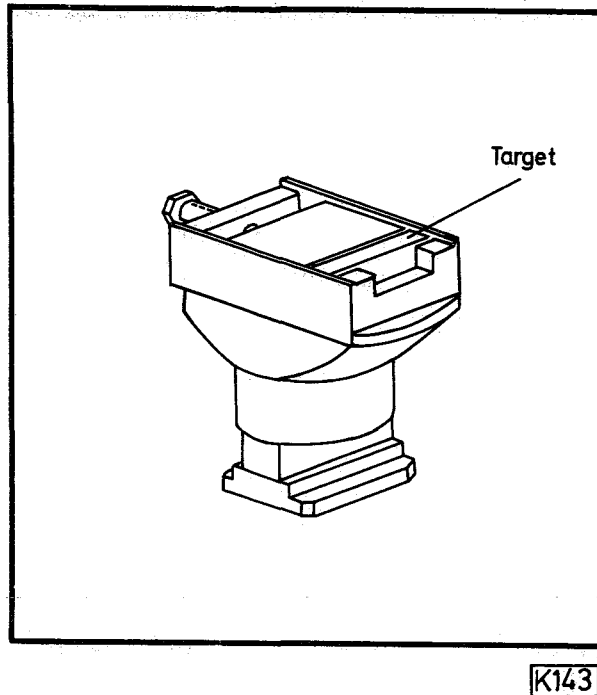


Abb. 24 Für Deuteronenbestrahlungen verwendeter Targetkopf

3.1.3. Bestrahlungsbedingungen

Für die $(d, \gamma n)$ - und die (d, p) -Reaktionen wurden Folienpakete mit in der Regel $6 \text{ PrAlO}_3/\text{Ag}$ -Briefen $1/2$ bis 1 Stunde lang mit Deuteronenströmen von 2 bis $5 \mu\text{A}$ bestrahlt, für $(d, 2n)$ -Reaktionen und $(d, 2n)/(d, p)$ -Wirkungsquerschnittsverhältnisse wurden jeweils 2 $\text{Pr}_6\text{O}_{11}/\text{Al}$ -Briefe 10 Minuten lang einem Strom von $1 \mu\text{A}$ ausgesetzt. Soweit erforderlich wurde vor der Bestrahlung mit Hilfe eines zweiten Targetkopfes die genaue Strahllage ermittelt und bei der Zusammenstellung des Folienpaketes berücksichtigt. Dadurch sollte gewährleistet werden, daß die Targets substanz voll vom Deuteronenstrahl getroffen wurde.

3.1.4. Bestrahlte Substanzen

Das für die Bestimmung von $(d, \gamma n)$ - und (d, p) -Wirkungsquerschnitten verwendete PrAlO_3 wurde auf folgendem Wege hergestellt:

Aus Lösungen definierten Gehaltes von $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ (hergestellt aus eingewogener 99,999 % Al-Folie) und $\text{Pr}(\text{NO}_3)_3$ (hergestellt aus 99,9 % Pr_6O_{11} ; Gehaltsbestimmung der Lösung durch komplexometrische Titration mit EDTA) wurde eine Mischlösung bereitet, in der das Atomverhältnis von Pr und Al ge-

nau 1:1 war. Diese Lösung wurde vorsichtig zur Trockene eingedampft, der trockene Salzrückstand fein pulverisiert und anschließend im H_2 -Strom vorsichtig erhitzt. Dabei zersetzten sich die Nitrate. Aus $Pr(NO_3)_3$ entstand in der reduzierenden H_2 -Atmosphäre Pr_2O_3 . Nach Abkühlung im H_2 -Strom wurde die Oxidmischung erneut pulverisiert, gemischt und anschließend 24 Stunden bei $1450^\circ C$ im H_2 -Strom geglüht^{*)}. Dabei bildete sich grünlich gefärbtes $PrAlO_3$, das erneut fein pulverisiert wurde und in dieser Form als TM-Substanz diente.

Zur Kontrolle wurde von der Substanz eine Röntgen-Pulveraufnahme angefertigt. Diese enthielt nur Linien des Perowskitgitters und bewies damit, daß die gewünschte TM-Verbindung tatsächlich vorlag.

Für die Bestimmung von (d,2n)-Wirkungsquerschnitten wurde von 99,9 % Pr_6O_{11} der Firma Fluka ausgegangen, daß zum Ausschluß jeglicher Verunreinigung vorher mit Hilfe der großen, in Abschnitt 3.3.1. beschriebenen Ionenaustauschersäulen gereinigt worden war.

3.2. Meßtechnik

3.2.1. Absoluteichung mit dem 4π -Zähler

Meßgerät: Als Meßgerät diente der 4π -Methandurchflußzähler FH-513 der Firma Frieseke und Hoepfner mit dem angeschlossenen digitalen Zählgerät FH-49. Der Detektor bestand aus zwei zylinderförmigen Zählkammern mit 3 cm Durchmesser und je 5 cm Höhe, in die mit Hilfe eines Drehtellers die Meßpräparate eingefahren werden konnten. Als Zählgas wurde technisches Methan verwendet. Die Zählrohrcharakteristik hatte eine Plateaulänge von ca. 500 V bei einer Neigung von maximal 0,3 %/100 V. Die Arbeitsspannung betrug 3,9 kV. Der Nulleffekt lag bei ca. 34 I/min. Die Totzeit der Meßanordnung war nach der Zweiquellenmethode (70) mit P-32 und über die Analyse der Abfallskurve von J-128 (71) zu 23 μ sec bestimmt worden. Bei allen Messungen wurden mindestens 10^5 Impulse gezählt, so daß die Standardabweichung stets kleiner als $\pm 0,3$ % war.

Meßpräparate: Die Meßpräparate bestanden aus einem Aluminiumring von 0,07 mm Stärke, mit 29 mm äußerem und 15 mm innerem Durchmesser, über den eine dünne, einseitig goldbedampfte Cellulosenitratfolie gespannt war. Diese Folie wurde nach einem im Kernforschungszentrum Karlsruhe gebräuchlichen Verfahren (26) (genaue Beschreibung siehe (25)) hergestellt, bei dem eine

^{*)} Herrn Priv.Doiz.Dr.C.Keller und seinen Mitarbeitern sei an dieser Stelle für die Durchführung der 24-stündigen Glühprozedur sowie die Herstellung und Deutung einer Röntgen-Pulveraufnahme des fertigen Produktes gedankt.

goldbedampfte Glasplatte unter Verwendung einer Zentrifuge mit einem dünnen Cellulosenitratfilm überzogen wurde. Das Aufbringen der aktiven Lösung (ausführliche Beschreibung siehe (25)) erfolgte gravimetrisch mit Hilfe einer Mikrowaage. Der während der Wägung auftretende Verdampfverlust wurde durch eine Extrapolationsmethode korrigiert. Zur gleichmäßigen Abscheidung der aktiven Substanz beim Eindampfen der Lösung unter der IR-Lampe war die Folie vorher mit Insulinlösung (72, 73) behandelt worden.

3.2.2. Messungen mit dem geeichten γ -Spektrometer

Meßanordnung: Verwendet wurde ein Nuclear Data 512-Kanal γ -Spektrometer der Type ND-130 AT mit einem 3"x3" NaJ(Tl)-Detektor (Harshaw, Integral-Line-Anordnung), der von einer Nukletron Hochspannungseinheit, Type NU-1250 versorgt wurde. Sämtliche Messungen wurden mit festeingestellter Hochspannung und Verstärkung ausgeführt. Für die Aufnahme eines Spektrums wurden jeweils 256 Kanäle verwendet. Der Energiebereich betrug etwa 3,6 MeV. Der Detektor befand sich in der Mitte einer 36x36x36 cm (Innenabmessungen) Bleikammer mit 5 cm Pb-Wandstärke, die innen mit je 1mm Cadmium, Kupfer und Plexiglas ausgekleidet war. Eine PVC-Halterung in der Kammer gestattete es, Präparate in 7 verschiedenen Positionen zu messen. Die Präparatabstände vom NaJ-Kristall betragen dafür:

Pos. 1	2 cm	Pos. 5	7 cm
Pos. 2	3 cm	Pos. 6	12 cm
Pos. 3	4 cm	Pos. 7	17 cm
Pos. 4	5 cm		

Eine Energieeichkurve für die gewählte Standardeinstellung zeigt Abbildung 25, das Energieauflösungsvermögen des NaJ-Detektors ist aus Abbildung 26 ersichtlich.

Meßpräparate: Für alle Messungen mit dem γ -Spektrometer und dem β -Zähler wurden Präparate einheitlicher Beschaffenheit verwendet. Sie bestanden aus einem 2 mm starken Al-Blech als Unterlage, auf dem mittels eines beidseitig klebenden Tesafilms ein Filtrierpapierblättchen mit der aktiven Substanz (Substanzdurchmesser 18 mm) aufgeklebt war. Abgedeckt war das Präparat mit 0,9 mg/cm² Mylarfolie. Bei sämtlichen γ -Messungen wurden die Präparate auf beiden Seiten mit 1 cm Graphit abgedeckt. Dadurch sollte bei Positronenstrahlern eine vollständige Konversion in 0,51 MeV Vernichtungsstrahlung in Präparatnähe erreicht werden.

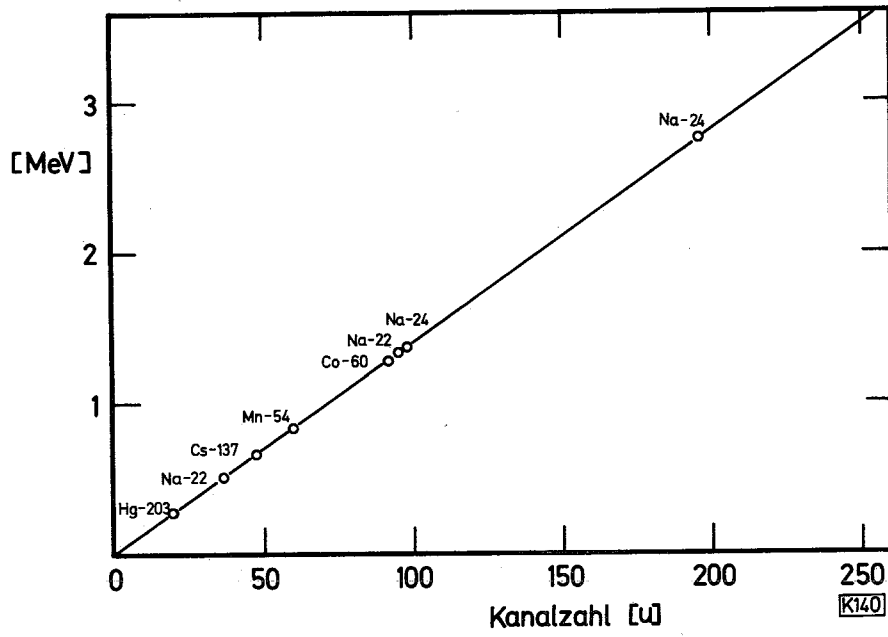


Abb. 25 Energieeichkurve für das γ -Spektrometer

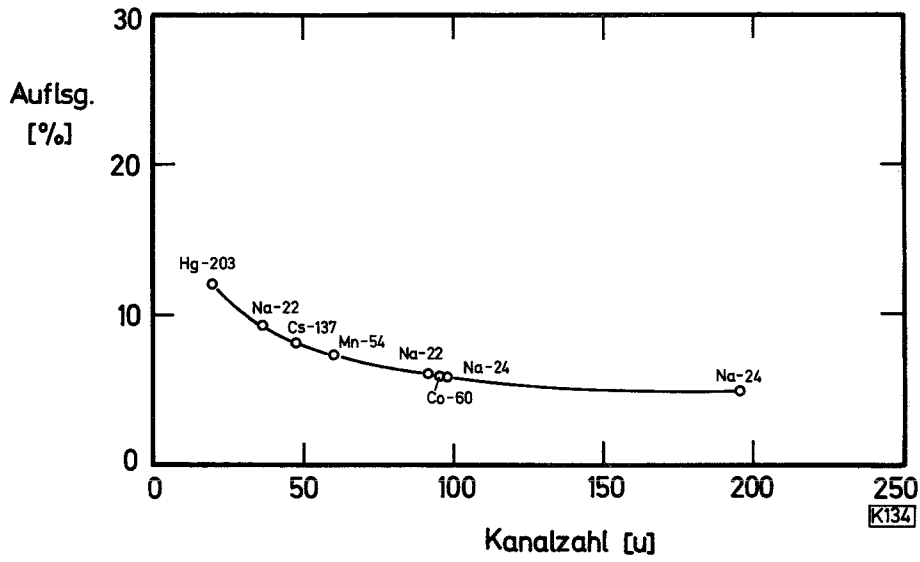


Abb. 26 Energieauflösung des NaJ-Detektors

3.2.3. Messungen mit dem geeichten β -Zähler

Meßanordnung: Die Meßanordnung bestand aus einem Telefunken-Meßplatz MS Str. 610/1 mit Methandurchflußzähler MS MD 632/2 in einer Bleikammer MS Blk 629/1. Das Meßpräparat und die Absorber konnten in reproduzierbaren Positionen unter das Zählrohr gebracht werden. Es wurde stets mit konstanter Geräteeinstellung (Spannung, Verstärkung, Schwelle) gemessen. Die Konstanz der Meßeigenschaften wurde durch ein Uranstandardpräparat kontrolliert.

Meßpräparate: Als Meßpräparate dienten die bereits im vorausgegangenen Abschnitt beschriebenen Standardpräparate. Die 2 mm starke Al-Unterlage hatte den Sinn, einheitliche Rückstreueigenschaften der Präparate zu gewährleisten. Unter diesen Bedingungen wird für praktisch alle β -Strahler Sättigungsrückstreuung erreicht.

Korrekturen: Soweit erforderlich wurden die Meßwerte für den Nulleffekt (15 I/min) und die Totzeit (9 μ sec) korrigiert. Es wurden in der Regel mindestens 10^5 Impulse gemessen.

Wirkungsgrad: Der Wirkungsgrad wurde unter Verwendung verschiedener Pb-Absorber mit Pr-Oxalatpräparaten bekannter Pr-142-Aktivität in Abhängigkeit von der Pr-Menge für konstante Geometrie gemessen. Die Pr-Menge wurde nach der Aktivitätsmessung durch komplexometrische Titration mit EDTA ermittelt. Die gefundenen Wirkungsgrade wurden in Tabelle 10 dargestellt.

Tabelle 10 Wirkungsgrad des β -Zählers für Pr-142-Präparate

Pr-Gehalt (mg)	Aktivität (μ Ci)	Wirkungsgrad W_B (%)				
		für Pb-Absorber mit einem Flächengewicht von (mg/cm^2)				
		448	332	292	190	0
1,890	0,418	0,4204	1,235	1,808	4,172	29,26
2,888	0,639	0,4012	1,203	1,759	3,980	28,64
3,717	0,822	0,4172	1,238	1,799	4,107	29,56
5,657	1,252	0,4158	1,236	1,806	4,147	28,51
6,613	1,463	0,4125	1,226	1,800	3,981	29,48
		0,4134	1,228	1,794	4,077	29,09
		$\pm 0,010$	$\pm 0,007$	$\pm 0,009$	$\pm 0,041$	$\pm 0,22$

3.3. Chemische Aufarbeitungen und Trennungen

3.3.1. Ionenaustauschertrennung

Für die Abtrennung von Nd und Pr aus den bestrahlten Substanzen wurden die in Tabelle 11 aufgeführten Austauschersäulen benutzt.

Tabelle 11 Daten für die Ionenaustauschertrennungen

Nr.	Abmessungen der Säulen		Elutionsmittel			Zeitbedarf z. Elution von		Anwendung z. Bestimmung der Nuklide
	Innen-durchm. (mm)	Harz-füllhöhe (cm)	α -HIB Konz. (m)	p _H -Wert	Durchfluß-geschwindigkeit (ml/min)	Nd	Pr	
1	6,9	130	0,5	3,50-4,30	0,1	31 h	36 h	Nd-140, Pr-142
2	3,8	53	0,5	4,20	0,16	90min	125min	Nd-141
3	2,0	33	0,4	4,15	0,15	15min		Nd-139

Alle Trennungen erfolgten bei Zimmertemperatur. Als Austauscherharz diente Dowex 50W-X4, -400 mesh. Die Elutionslösung wurde aus α -Hydroxyisobuttersäure (α -HIB), purum der Fa. Fluka hergestellt. Die p_H-Einstellung erfolgte mit einem Knick-p_H-Meter auf 0,02 p_H-Einheiten genau. Eluiert wurde mit einem N₂-Überdruck von ca. 0,5 bis 1 atü.

Harzbeladung: Für die Trennungen Nr. 1 und Nr. 2 (Tabelle 11) erfolgte die Harzbeladung außerhalb der Säulen. Dafür wurden Harzmengen verwendet, deren Aufnahmekapazität nur zur Hälfte ausgenutzt war. Das Harz wurde etwa 10 bis 20 min lang unter Rühren mit der schwach salzsauren Ausgangslösung auf dem Wasserbad erwärmt. Unter diesen Bedingungen gelangten, wie Vorversuche zeigten, etwa 99 % der Ausgangssubstanz auf das Harz. Das beladene Harz wurde mit dest. Wasser gewaschen bis es nicht mehr sauer reagierte und dann auf die Säule gegeben.

Für die Trennung Nr. 3 (Tabelle 11) wurde das bestrahlte Pr₆O₁₁ mit 2 Tropfen 1n HCl in der Wärme gelöst, die Lösung zur Trockene eingedampft, der Rückstand mit 1 bis 2 Tropfen Wasser aufgenommen und diese Lösung direkt auf die Säule gegeben.

Zu Nr. 1 (Tabelle 11): Mit der in Abbildung 27 schematisch dargestellten Anlage wurden gleichzeitig sechs Proben aufgearbeitet. Je drei Trennsäulen, von denen eine in Abbildung 27 gezeigt wird^{*)}, wurden aus der ebenfalls in

^{*)} Die Säulen wurden einem von Herrn Dr. A.v.Baekmann freundlicherweise zur Verfügung gestellten Muster nachgebaut.

Abbildung 27 dargestellten Mischvorrichtung mit α -HIB-Lösung versorgt. Während der Elution änderte sich der p_H -Wert der α -HIB-Lösung kontinuierlich von 3,5 auf etwa 4,3. Das Eluat wurde von automatischen Fraktionssammlern (Radirac, Fa. LKB, Schweden) in Reagenzgläsern gesammelt. Der Fraktionswechsel erfolgte alle 15 min. Der Reagenzglashalter war so eingerichtet worden, daß ein Sammler 30 h lang wartungsfrei das Eluat aus drei Säulen auffangen konnte. Nach Zusatz von je zwei Tropfen gesättigter Oxalsäurelösung zu den einzelnen Eluaten wurden die Nd- und Pr-Fractionen auf Grund der Fällungen identifiziert.

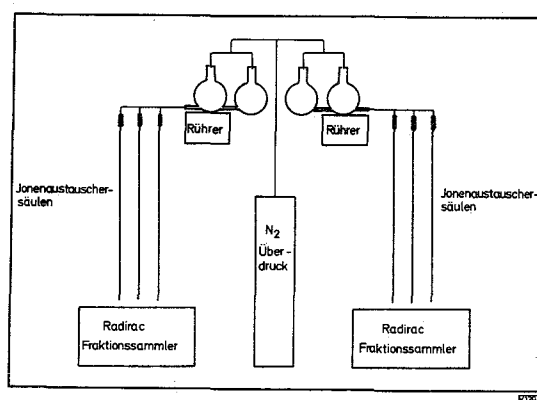
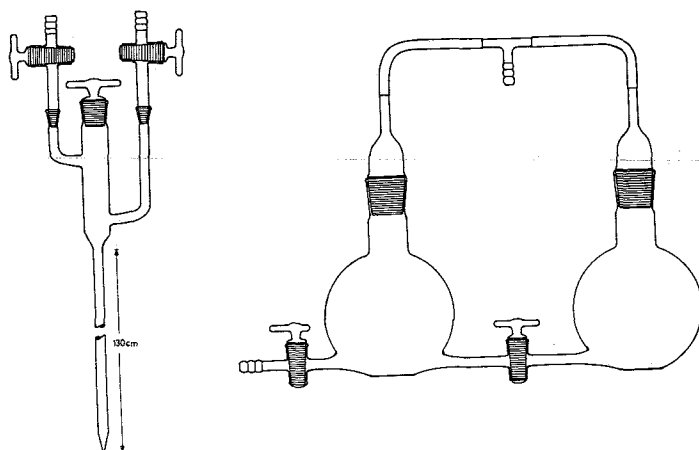


Abb. 27

Ionenaustauschapparatur

Zu Nr. 2 (Tabelle 11): Die Trennanordnung bestand aus zwei Säulen, an die jeweils ein Radirac-Fraktionssammler mit Tropfenzähler angeschlossen war. Es wurden je acht Tropfen Eluat in einem Reagenzglas gesammelt. Die Nd enthaltenden Gläser wurden unter Berücksichtigung der Elutionskurve (Abbildung 6) durch Aktivitätsmessung mit einem Telefunken Monitor ermittelt.

Zu Nr. 3 (Tabelle 11): Der Bereich der Nd-Elution war durch Vorversuche festgestellt worden. Er wurde bei jeder Trennung mit einem Telefunken Monitor kontrolliert.

3.3.2. Herstellung von Meßpräparaten

PrAlO₃-Präparate: Der bestrahlte Ag-Folienbrief wurde vorsichtig aufgeklappt und ein mit einem Tropfen Wasser angefeuchtetes Filtrierpapierblättchen auf das PrAlO₃ gelegt. Durch Drehen unter gleichzeitigem Andrücken wurde das PrAlO₃ praktisch vollständig auf das Filtrierpapierblättchen überführt. Über dieses wurde ein zweites Filtrierpapierblättchen so geklebt, daß die Targetsubstanz vollständig eingeschlossen war. Dieser Sandwich wurde auf ein 2 mm Al-Präparatblech gelegt und mit Mylarfolie abgedeckt.

Präparate aus der Ionenaustauschertrennung Nr. 1 (Tabelle 11): Aus den vereinigten Eluaten einer Fraktion wurde das Lanthanid durch Zugabe von gesättigter Oxalsäurelösung ausgefällt. Nach Filtration (Hahnsche Nutsche) und Trocknung (15 min bei 105°C) wurde der Oxalatniederschlag auf 2 mm Al-Blech montiert (näheres siehe (36)).

Präparate aus der Ionenaustauschertrennung Nr. 2 (Tabelle 11): Bereits während der Elution wurden die Nd-Eluate auf einem Präparatträger unter Verwendung von IR-Lampen und Ventilatoren zur Trockene eingedampft, so daß das Meßpräparat bereits kurz nach Beendigung der Nd-Elution zur Verfügung stand.

Präparate aus der Ionenaustauschertrennung Nr. 3 (Tabelle 11): Die Nd-haltigen Tropfen wurden auf Filtrierpapierblättchen aufgefangen und diese darauf sofort unter der IR-Lampe getrocknet.

Präparate zur Bestimmung des Verhältnisses $\sigma(d,2n)/\sigma(d,p)$: Das bestrahlte Pr₆O₁₁ wurde mit zwei Tropfen 1n HCl in der Wärme gelöst, unter Zusatz von zwei Tropfen konz. H₂SO₄ zur Trockene eingedampft, der Rückstand erneut mit zwei Tropfen konz. H₂SO₄ abgeraucht, in wenig Wasser gelöst und zur Lösung etwa 1 ml einer HF-sauren gesättigten NaF-Lösung zugefügt. Die PrF₃-Fällung wurde abfiltriert, gewaschen und getrocknet.

3.3.3. Aufschluß von PrAlO₃

Der PrAlO₃-Filtrierpapiersandwich wurde verascht und der Rückstand zusammen mit definierten Nd- und Pr-Trägermengen im Pt-Tiegel mit Na₂S₂O₇ aufgeschlossen. Die Schmelze wurde in Wasser gelöst und durch Zusatz von NH₃-Lösung Al, Pr und Nd ausgefällt. Nach einer Umfällung wurden die Hydroxide in 3 ml 1n HCl gelöst. Diese Lösung diente zur Beladung des Austauscherharzes.

3.3.4. Ausbeutebestimmung

Die Oxalatfällung des Meßpräparates wurde vorsichtig zusammen mit dem unterliegenden Filtrierpapier und der Mylarabdeckfolie in einen Porzellantiegel überführt und zunächst über einem Brenner, dann im Tiegelofen bei 900°C verascht. Das dabei entstandene Oxid wurde in 1 ml 1n HCl gelöst. Zu dieser Lösung wurden 45 ml H_2O , 5 ml 0,2m Na-acetatlösung, wenig 1m NH_3 -Lösung und 0,2m Essigsäure bis zur Einstellung eines p_H -Wertes von 6,4 gegeben. Unter Zusatz von 5 Tropfen 0,1%iger Xylenolorangelösung (in 1:1(vol.) Äthanol/ H_2O gelöst) wurde die Lösung mit 0,01m EDTA-Lösung bis zum Umschlag orange \rightarrow gelb titriert. Während der Titration wurde der p_H -Wert mit einem Knick p_H -Meter kontrolliert und ggf. durch tropfenweisen Zusatz von verdünnter NH_3 -Lösung auf einen Wert von 5,8 bis 6,4 eingestellt.

3.4. Chronologische Zusammenstellung der Arbeitsschritte zur Bestimmung von Anregungsfunktionen

Bestimmung von (d,3n)- und (d,p)-Anregungsfunktionen:

1. Deuteronenbestrahlung von PrAlO_3
2. Herstellung eines PrAlO_3 -Meßpräparates
3. Bestimmung der Na-24 Aktivität im geeichten γ -Spektrometer
- a. Gemeinsame Ermittlung der (d,3n)- und (d,p)-Anregungsfunktionen
 - 4a Veraschung des PrAlO_3 -Präparates
 - 5a Schmelzaufschluß von PrAlO_3
 - 6a Beladung des Ionenaustauscherharzes
 - 7a Ionenaustauschertrennung Nr. 1 (Tabelle 11)
 - 8a Herstellung von Nd- und Pr-oxalat-Meßpräparaten
 - 9a Bestimmung der Nd-140 Aktivität im geeichten γ -Spektrometer
 - 10a Bestimmung der Pr-142 Aktivität im geeichten β -Zähler
 - 11a Messung des Nd-140 und Pr-142 Aktivitätsabfalls
 - 12a Nd- und Pr-Ausbeutebestimmung
- b. Alleinige Ermittlung der (d,3n)-Anregungsfunktion
 - 4b Einlage einer Wartezeit
 - 5b Bestimmung der Nd-140 Aktivität im geeichten γ -Spektrometer
 - 6b Messung des Nd-140 Aktivitätsabfalls

Bestimmung der (d,2n)-Anregungsfunktion:

1. Deuteronenbestrahlung von Pr_6O_{11}
2. Ionenaustauschertrennung Nr. 2 (Tabelle 11)
3. Herstellung des Meßpräparates
4. Bestimmung der Nd-141 Aktivität im geeichten γ -Spektrometer
5. Messung des Nd-141 Aktivitätsabfalls

4. Literatur

- (1) Bohr, N. Nature 137, 344 (1936)
- (2) Oppenheimer, J.R. u. Phillips, M. Phys. Rev. 48, 500 (1935)
- (3) Glendenning, N.K. Ann. Rev. Nucl. Sci. 13, 191 (1963)
- (4) Yaffe, L. Ann. Rev. Nucl. Sci. 12, 153 (1962)
- (5) Smith, M.L. AERE - R 5097 (1965)
- (6) Bramlitt, E.T. u. Fink, R.W. Phys. Rev. 131, 2649 (1963)
- (7) Saha, G.B., Porile, N.T. u. Yaffe, L. Phys. Rev. 144, 962 (1966)
- (8) Mac Farlane, K.D. u. Almodovar, I. Phys. Rev. 127, 1665 (1962)
- (9) Seelmann-Eggebert, W. et al. Nuklidkarte, 2. Auflage, Bundesministerium f. Wiss. Forsch. (1963)
- (10) Mattauch, J.H.E., Thiele, W. u. Wapstra, A.H. Nucl. Phys. 67, 1 (1965)
- (11) Cameron, A.G.W. CRP - 690 (1957)
- (12) Birjukov, E.I. u. Simanskaya, N.S. Istvest. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz. 27, 1402 (1963)
- (13) NAS-Data Sheets NRC 59-1-95
- (14) Kolesov, G.M., Malysheva, T.V. u. Nikityuk, L.N. Istvest. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz. 27, 1267 (1963)
- (15) Gromov, K.Ya. et al. Istvest. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz. 27, 1357 (1963)
- (16) Gromov, K.Ya. et al. Zh. Eksperim. i Teor. Fiz. 47, 1644 (1964)
- (17) Gromov, K.Ya. et al. JINR - P-1857 (1964)
- (18) NAS-Data Sheets NRC 59-1-96/101
- (19) Hisatake, K. et al. Nucl. Physics 56, 625 (1964)
- (20) Birjukov, E.I., Novikov, V.T. u. Simanskaya, N.S. Istvest. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz. 27, 1408 (1963)
- (21) Fujioka, M., Hisatake, K. u. Takahashi, K. Nucl. Phys. 60, 294 (1964)
- (22) NAS-Data Sheets NRC-61-2-130
- (23) Danby, G.T., Foster, J.S. u. Thompson, A.L. Can. J. Phys. 36, 1483 (1958)
- (24) NAS-Data Sheets NRC-61-3-86
- (25) Lange, J. u. Münzel, H. KFK-252 (1964)
- (26) Ellgering, H. Privatmitteilung (1962)
- (27) Pate, B.D. u. Yaffe, L. Canad. J. Chem. 33, 929 (1955)
- (28) NAS-Data Sheets NRC-61-2-133/134
- (29) Seelmann-Eggebert, W. u. Pfennig, G. Radionuklid-Tabellen Bundesministerium f. Wiss. Forsch. (1964)
- (30) Heath, R.L. IDO - 16408
- (31) Schneider, Th. u. Münzel, H. Atompraxis 7, 412 (1961)
- (32) NAS-Data Sheets NRC 5-2-95
- (33) Vartanov, N.A. et al. Instr. Exptl. Techn. No. 2, 286 (1965)
- (34) Silantev, A.N. Instr. Exptl. Techn. No. 5, 831 (1963)
- (35) Lazar, N.H. et al. Nucleonics 14, (4), 52 (1956)

- (36) Ruf, H. u. Münzel, H. KFK - 199 (1964)
- (37) Surls, J.P. u. Choppin, G.R. J. Am. Chem. Soc. 79, 855 (1957)
- (38) Deelstra, H. u. Verbeek, F. Anal. Chim. Acta 31, 251 (1964)
- (39) Stagg, W.R. u. Powell, J.E. Inorg. Chem. 2, 242 (1964)
- (40) Smith, H.L. u. Hoffman, D.C. J. Inorg. Nucl. Chem. 2, 243 (1956)
- (41) Wolfsberg, K. Anal. Chem. 34, 518 (1962)
- (42) Lyle, S.J. u. Rahman, Md.M. Talanta 10, 1177 (1963)
- (43) Lyle, S.J. u. Rahman, Md.M. Talanta 10, 1183 (1963)
- (44) Schneider, S.J., Roth, R.S. u. Warning, J.L. J. Research NBS 65A 345, (1961)
- (45) Clarke, E.T. Phys. Rev. 71, 187 (1947)
- (46) Batzel, R.E., Crane, W.W.T. u. O'Kelly, G.D. Phys. Rev. 91, 939 (1953)
- (47) Lenk, P.A. u. Slobodrian, R.J. Phys. Rev. 102, 1229 (1959)
- (48) Christaller, G. European Colloquium on A.V.F. Cyclotrons, Eindhoven (1965)
- (49) Ring, S.D. u. Litz, L.M. LRL - 108 (1954)
- (50) Münzel, H. u. Pfennig, G. KFK - Bericht i. Vorbereitung
- (51) Bleyl, H.J. KFK - 534 (1967)
- (52) Hänsel, H. Grundzüge der Fehlerrechnung, VEB Dtsch. Verlag d. Wiss. Berlin (1965)
- (53) Williamson, C. u. Boujot, J.P. CEA - 2189 (1962)
- (54) Wilkinson, G. u. Hicks, H.G. Phys. Rev. 75, 1687 (1949)
- (55) Wille, R.G. u. Fink, R.W. Phys. Rev. 118, 242 (1960)
- (56) Grissom, J.T., Koehler, D.R. u. Alford, W.L. Phys. Rev. 142, 725 (1966)
- (57) De Wire, J.W., Pool, M.L. u. Kurbatov, J.D. Phys. Rev. 61, 564 (1942)
- (58) Jensen, E.N., Laslett, L. u. Zaffarano, D.J. Phys. Rev. 80, 862 (1950)
- (59) Wyatt, E.I. et al. Nucl. Sci. Eng. 11, 74 (1961)
- (60) Otozai, K. et al. Nucl. Phys. 81, 322 (1966)
- (61) Baron, N. u. Cohen, B.L. Phys. Rev. 129, 2636 (1963)
- (62) Moeken, H.H.Ph. Dissertation, Universität Amsterdam (1957)
- (63) Polak, H.L. et al. Nucl. Phys. 5, 271 (1958)
- (64) Alford, W.L., Koehler, D.R. u. Polk, R.G. Nucl. Phys. 44, 439 (1963)
- (65) Bock, R. u. Rüdell, R. Z. Physik 174, 440 (1963)
- (66) Kuellmer, A. Kerntechnik 4, 234 (1962)
- (67) Kraut, A. Kerntechnik 7, 82 (1965)
- (68) Kuellmer, A. Vakuum Techn. 12, 37 (1963)
- (69) Reiser, M. Nucl. Instr. Meth. 13, 55 (1961)
- (70) Eichelberger, J.F. (Herausgeber) MLM - 1117 (1961)
- (71) Martin, G.R. Nucl. Instr. Meth. 13, 263 (1961)
- (72) Langer, L.M. Rev. Sci. Instr. 20, 216 (1949)
- (73) Le Gallic, Y. u. Thénard, M. Compt. Rend. 244, 2909 (1957)