

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

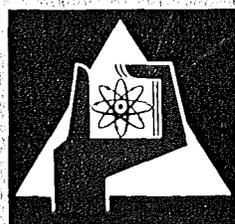
Februar 1973

KFK 1745

Institut für Angewandte Kernphysik

**Gamma-Resonanzfluoreszenz: Eine Methode
zur zerstörungsfreien Bestimmung von U-235?**

C. Weitkamp



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 1745

Institut für Angewandte Kernphysik

Gamma-Resonanzfluoreszenz : Eine Methode
zur zerstörungsfreien Bestimmung von U-235 ?

C. Weitkamp

Gesellschaft für Kernforschung mbH, Karlsruhe

RESÜMEE

Bei Durchsicht des Niveauschemas von ^{235}U auf solche Zustände, die sich durch einen intensiven γ -Übergang zum Grundzustand abregen und deren Energie hinreichend gut mit der γ -Strahlung einer radioaktiven Quelle übereinstimmt, durch γ -Resonanz-Fluoreszenz angeregt zu werden, ließen sich nur wenige Kandidaten finden. Die Gründe hierfür sind

- (a) Fehler von 0.1 bis 2 keV für die Niveauenergien in ^{235}U gegenüber durch thermische Dopplerverbreiterung hervorgerufenen Linienbreiten um 1 eV, und
- (b) Unkenntnis sowohl der Lebensdauern, wie sie für die Bestimmung der zu erwartenden Wirkungsquerschnitte erforderlich sind, als auch (für die meisten Zustände) der Niveauparameter, aus denen die Lebensdauern errechnet werden können.

Am meisten Aussicht auf Erfolg bietet die Anregung des Zustandes mit den Quantenzahlen $J^{\pi}K = 5/2^{+}5/2$ und einem Grundzustandsübergang von (1115.6 ± 0.3) keV durch eine ^{65}Zn -Quelle (Halbwertszeit 245 Tage), die eine γ -Linie von (1115.518 ± 0.025) keV emittiert. Das Experiment mit der Quelle auf Zimmertemperatur ergab keinen Effekt. Daher wird vorgeschlagen, durch Coulomb-Fragmentation dopplerverbreiterte γ -Linien zu verwenden.

GAMMA RESONANCE FLUORESCENCE : A METHOD FOR THE NONDESTRUCTIVE DETERMINATION OF U-235?

ABSTRACT

The level diagram of ^{235}U has been searched for states that are depopulated by strong γ transitions to the ground state and whose energy is sufficiently closely matched by a γ ray from a radioactive source so γ resonance fluorescence can be expected. Few candidates were found because

- (a) errors of level energies of ^{235}U amount to 0.1 to 2 keV as compared to thermal line broadening of about 1 eV, and
- (b) lifetimes for the computation of the expected cross section have neither been measured, nor have the quantum numbers for their calculation been determined for the majority of states.

The most promising candidate is the $J^{\pi}K = 5/2^{+}5/2$ level for which the deexciting γ ray is quoted to have an energy of (1115.6 ± 0.3) keV, and a source of 245 d - ^{65}Zn with a γ ray of (1115.518 ± 0.025) keV. The experiment performed with the source at room temperature did not yield a positive result; a similar measurement is proposed in which use is made of Doppler broadening by Coulomb fragmentation.

GAMMA-RESONANZFLUORESCENZ : EINE METHODE ZUR ZERSTÖRUNGSFREIEN BESTIMMUNG VON U-235 ?

C. Weitkamp
 Institut für Angewandte Kernphysik
 Kernforschungszentrum Karlsruhe

EINLEITUNG

Die zerstörungsfreie Bestimmung von Spaltstoff in Reaktorbrandelementen und dem bei ihrer Herstellung anfallenden Schrott und Abfall ist sowohl aus betrieblicher Sicht als auch für Zwecke der Spaltstoffflußkontrolle von großem Interesse. Dies gilt in besonderem Maße für die Analyse hochangereicherter Urans, dessen merkantiler Wert beträchtlich ist und dessen Verarbeitung zu Kernsprengsätzen so unvergleichbar einfacher ist als die aller anderen als Reaktorbrandstoff verwendeten Materialien.

An zerstörungsfreien Methoden zur Bestimmung von ^{235}U wird gegenwärtig überwiegend die passive Messung der Gamma-Eigenstrahlung, gelegentlich kombiniert mit γ -Durchstrahlungstechniken, angewandt^{1,2}. Dieses Verfahren zeichnet sich durch geringen apparativen Aufwand, einfache Handhabung und große Betriebssicherheit aus; infolge der starken Absorption der 185 keV - γ -Strahlung des ^{235}U in Hüll- und Verpackungsmaterialien und besonders im Brennstoff selbst sind der Genauigkeit der Methode und der Größe der Proben aber enge Grenzen gesetzt. Daher werden für höhere Ansprüche aktive Verfahren entwickelt, bei denen durchdringende Teilchenstrahlen Kernreaktionen induzieren, deren hochenergetische Reaktionsprodukte gemessen werden; ihre Intensität ist ein Maß für die Spaltstoffmenge^{3,4}. Als induzierende Strahlung werden bisher überwiegend Neutronen aus einem Beschleuniger, aus einem Reaktor oder aus einer radioaktiven ((α, n) -, (γ, n) - oder spontan spaltenden) Quelle verwendet. Als induzierte Strahlung werden Neutronen, die man von der Primärstrahlung durch ihre Energie, durch ihr Zeitverhalten oder durch ihre Multiplizität unterscheidet, sowie mittel- und hochenergetische γ -Strahlung gemessen. Photoinduzierte Kernreaktionen, bei denen Neutronen entstehen, werden zu diesem Zweck ebenfalls herangezogen. Auch hier ist ein Beschleuniger erforderlich, weil keine radioaktiven Quellen bekannt sind, die die erforderlichen hohen γ -Energien liefern.

Alle aktiven Methoden erfordern für Installation und Betrieb einen größeren Aufwand als die passiven Verfahren. Dieser Aufwand ließe sich beträchtlich reduzieren, wenn es gelänge, ein Verfahren zu entwickeln, das mit einer γ -Quelle mittlerer Energie (≈ 1 MeV), wie sie leicht verfügbar und einfach zu handhaben sind, eine hinreichend spezifische Aussage über den Spaltstoffgehalt liefert.

PHYSIKALISCHE GRUNDLAGEN

Gammastrahlung mittlerer Energie ruft mit nennenswerter Häufigkeit in Materie vier Arten Effekte hervor, nämlich inkohärente (Compton-) und kohärente (Rayleigh-) Streuung, Absorption (Photoeffekt) und für Energien oberhalb 1022 keV auch Paarerzeugung. Die Wirkungsquerschnitte für diese Effekte (in der angegebenen Reihenfolge) sind für γ -Energien um bzw. knapp oberhalb 1 MeV und Elemente mit Ordnungszahlen Z um 92 proportional Z , $Z^{5/2}$, $Z^{9/2}$ und $Z^{5/2}$ und deshalb für die Identifikation von Elementen und erst recht von Isotopen ungeeignet. In Tabelle I sind zur Illustration der Größenverhältnisse Querschnitte für Uran bei vier verschiedenen γ -Energien angeführt. Man erkennt, daß der Wirkungsquerschnitt für elastisch gestreute γ -Quanten unter normalen Bedingungen nur einen kleinen Beitrag zum

Tabelle I. Wirkungsquerschnitte für Uran in barn (nach Ref.⁵)

γ -Energie	Compton-Effekt	Rayleigh-Streuung	Photoeffekt	Paarerzeugung
0,5 MeV	26,1	4,1	46,6	-
1,0 MeV	19,3	1,0	10,5	-
1,5 MeV	15,7	0,5	4,8	0,8
2,0 MeV	13,4	0,3	2,9	2,3

Gesamtquerschnitt liefert. Dementsprechend wird in einer apparativen Anordnung, wie sie in Abb. 1 skizziert ist, an der Stelle der Primärenergie im γ -Spektrum nur eine kleine Linie erscheinen. Diese Ver-

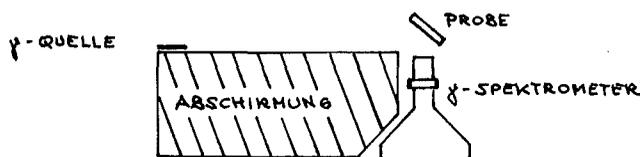


Abb. 1. Versuchsaufbau, schematisch

hältnisse ändern sich drastisch, wenn die Energie der Primärlinie mit der Niveauenergie eines Kernzustands zusammenfällt, der vom Grundzustand aus angeregt werden kann; zum Wirkungsquerschnitt für Rayleigh-Streuung tritt dann der Querschnitt für Resonanzstreuung hinzu, so daß der Gesamtquerschnitt um

Größenordnungen ansteigen kann. Allerdings muß dazu das γ -Quant zusätzlich zur Niveauenergie die auf den Kern bei der Anregung übertragene kinetische Energie

$$R = E^2 / (2 Mc^2) \quad (1)$$

mitbringen. Hierin sind E die γ -Energie und Mc^2 die Ruhenergie des Kerns. Obgleich bei der Temperatur T zur natürlichen Linienbreite Γ die Dopplerbreite

$$\Delta = E (2 kT/Mc^2)^{1/2} \quad (2)$$

hinzukommt, die Γ meist beträchtlich übersteigt, ist die Gesamtbreite⁴⁾ $(\Gamma^2 + \Delta^2)^{1/2}$ für praktisch alle Fälle soviel kleiner als R , daß, anders als in der Atomspektroskopie, bei Kernen die von einem System emittierte Strahlung ein anderes identisches nicht zur Fluoreszenz anregen kann, wenn man nicht besondere Kunstgriffe anwendet. Für den Fall des ^{235}U kommt die praktische Schwierigkeit hinzu, daß beim Zerfall keines der drei Mutterisotope hinreichend intensive und hochenergetische γ -Strahlung emittiert wird.

Nun liegt der mittlere Abstand der Kernniveaus des ^{235}U im Bereich um 1 MeV, die vom Grundzustand durch Dipol- oder elektrische Quadrupolstrahlung angeregt werden können, in der Größenordnung 10 keV und fällt mit wachsender Anregungsenergie schnell ab. Andererseits ist eine Vielzahl von γ -Linien radioaktiver Quellen in diesem Energiebereich bekannt. Es erscheint daher der Mühe wert zu untersuchen, ob nicht die Energien einer geeigneten γ -Quelle und eines Niveaus des ^{235}U zufällig hinreichend gut zusammenfallen, Resonanzfluoreszenz hervorzurufen.

Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktion läßt sich in der Form⁶

$$\sigma = 2\pi^{3/2} \lambda^2 \frac{2J_1+1}{2J_0+1} \left(\frac{\Gamma_0}{\Gamma}\right)^2 \frac{\Gamma}{2(\Delta_e^2 + \Delta_a^2)} \exp\left(-\frac{(E_e - E_r)^2}{\Delta_e^2 + \Delta_a^2}\right) \quad (3)$$

schreiben, wobei $\lambda = hc/E$ die Wellenlänge der γ -Strahlung geteilt durch 2π , J_0 und J_1 die Drehimpulsquantenzahlen des ^{235}U im Grund- und im anzuregenden Zustand und Γ und Γ_0 die Gesamtbreite und die Partialbreite des Niveaus für γ -Abregung in den Grundzustand bedeuten. Δ_e und Δ_a sind die Gesamtbreiten von Emittent und Absorber, E_e und $E_r = E_a - R$ die genauen Werte für die Energie der emittierten Linie und die erforderliche Resonanzenergie. Hieraus erhält man mit den Abkürzungen

$$(2J_1+1)/(2J_0+1) \equiv g, \quad \Gamma_0/\Gamma \equiv \gamma, \quad \Delta_e^2 + \Delta_a^2 = \delta^2, \quad |E_e - E_r| \equiv \Delta E$$

für Glg. (3) den einfachen Ausdruck

$$\sigma = 1,4 g \gamma^2 \left[(E/\text{MeV})^2 (\tau/\text{ps}) (\delta/\text{eV}) \right]^{-1} \exp -(\Delta E/\delta)^2 \text{ barn}, \quad (4)$$

worin die Energie E , die Lebensdauer τ des Niveaus und der Breitenparameter δ auf bequeme Weise in den üblichen Einheiten eingesetzt werden können, um das Ergebnis direkt in barn zu erhalten.

Man erkennt aus dem ersten Klammersausdruck der Glg. (4), daß der Wirkungsquerschnitt wegen $\delta \propto E$ (Glg. (2)) bei Dipolanregung ($\tau \propto E^{-3}$) in erster Näherung nicht von der Energie abhängt und bei Quadrupolanregung ($\tau \propto E^{-5}$) sogar quadratisch mit E ansteigt; der entscheidende Term ist aber der Exponentialausdruck, der zeigt, daß der Unterschied zwischen γ - und Resonanzenergie höchstens von der Größenordnung des Breitenparameters δ sein darf. Um eine größere Chance zu haben, die Resonanzbedingung zu erfüllen, wird man daher versuchen, δ so groß wie möglich zu machen, obwohl σ außer über den Exponentialterm auch noch mit $1/\delta$ von δ abhängt.

Eine Vergrößerung von δ ist nach Glg. (2) direkt über die Temperatur der Quelle zu erzielen; werden hinreichend kurze Zeit vor Emission des γ -Quants aus der Quelle noch ein oder mehrere andere Teilchen emittiert, so ist die γ -Linie zusätzlich um den Betrag verbreitert, der der Rückstoßgeschwindigkeitsverteilung aus der vorhergehenden Reaktion entspricht. Diese Verteilungsfunktion hängt noch von der Winkelkorrelation der emittierten Teilchen ab; für Teilchen der Ruhmasse null (γ -Quanten, Neutrinos) gibt Glg. (1) ein Maß für die Größe dieser Verbreiterung, die noch durch Effekte in der Elektronenhülle bzw. im Atomverband beeinflusst werden kann. Einen Überblick über die Größenordnung von Rückstoßverbreiterung und thermischer Verbreiterung für verschiedene Kernmassen und γ -Energien gibt Tabelle II. Dabei hängt die Rückstoßverbreiterung von der Energie des zuvor emittierten Teilchens, die

Tabelle II. Rückstoßverschiebung bzw. -verbreiterung R und thermische Dopplerverbreiterung Δ (atomares Gas, $T = 293^\circ\text{K}$) für die Emission oder Absorption von γ -Strahlung der Energie E durch einen Kern der Massenzahl A .

Energie E	Rückstoßenergie R in eV					thermische Dopplerverbreiterung Δ in eV				
	A=50	A=100	A=150	A=200	A=235	A=50	A=100	A=150	A=200	A=235
0,5 MeV	2,66	1,33	0,89	0,67	0,57	0,52	0,37	0,30	0,26	0,24
1,0 MeV	10,64	5,32	3,55	2,66	2,26	1,04	0,73	0,60	0,52	0,48
1,5 MeV	23,95	11,98	7,98	5,99	5,09	1,55	1,10	0,90	0,78	0,72
2,0 MeV	42,57	21,29	14,19	10,64	9,06	2,07	1,47	1,20	1,04	0,96

thermische Verbreiterung von der Energie des interessierenden Übergangs ab. Man erkennt, daß die thermische Verbreiterung für vergleichbare Energien sehr viel kleiner ist als die Rückstoßverbreiterung - wenn sie stattfindet. Weil die Bremszeiten nämlich nur für Gase um 10^{-9} sek, für flüssige und feste Quellsbstanzten dagegen zwischen 10^{-12} und 10^{-13} sek betragen und die Lebensdauer der Kernniveaus ebenfalls in dieser Größenordnung liegt, kann man im allgemeinen Fall nicht mit den aus Glg. (1) ermittelten Werten rechnen; für molekulare Gase, bei denen Sekundäreffekte eine große Rolle spielen und sich der Rückstoß in verwickelter Weise auf die verschiedenen Konstituenten verteilt, unterscheidet sich

⁴⁾ Im folgenden sei die Linienform stets durch eine Gaußkurve approximiert, auch wenn sich, wie z.B. im Falle der Verbreiterung durch Elektroneneinfang, die wahre Verteilung von der Gaußform stark unterscheidet.

der Anteil Δ an der Gesamtbreite oft signifikant von den Werten in der Tabelle. Für eine detaillierte Behandlung dieser Frage sei auf weiterführende Literatur^{6,7} verwiesen.

KANDIDATEN FÜR γ -RESONANZFLUORESZENZ IN ^{235}U

Die einfach erscheinende Methode, die Liste der bekannten Zustände des ^{235}U durchzugehen und mit γ -Energie-Tabellen zu vergleichen, um dann anhand Glg. (4) die Größe des zu erwartenden Effekts zu berechnen, liefert nicht direkt verwertbare Ergebnisse. Die Gründe dafür sind folgende:

- (1) Die kleinsten erreichten Werte für die Gesamtfehler bei der Messung von γ -Energien im Bereich um 1 MeV liegen heute⁸ bei etwa 20 eV; dieser Betrag übersteigt die thermische Dopplerbreite bei Zimmertemperatur (vgl. Tabelle II) noch um den Faktor 20 bis 50.
- (2) Selbst die intensiven Linien langlebiger Quellen sind bisher nur zu einem kleinen Teil mit dieser Genauigkeit bestimmt. Vielfach reichen die statistischen Verhältnisse für eine Genauigkeit in diesem Bereich zwar aus, aber die Autoren verschweigen wichtige Details der Messung und Auswertung, insbesondere die Werte für die verwendeten Standard-Energien, und machen dem Leser damit unmöglich, ihre Ergebnisse konsistent in eine Liste ähnlich genau gemessener anderer Energien einzufügen.
- (3) Niveauenergien des ^{235}U sind über den radioaktiven Zerfall von ^{239}Pu , ^{235}Np und ^{235}Pa und eine Vielfalt von Kernreaktionen zugänglich. Die daraus resultierenden Energiewerte für Zustände um 1 MeV sind aber in den Fällen, wo sie γ -spektroskopisch bestimmt wurden, nur auf 100 bis 300 eV genau bekannt. Durch Spektroskopie geladener Teilchen lassen sich die Niveauenergien sogar nur auf 2 keV genau angeben.
- (4) Lebensdauern und Verzweigungsverhältnisse sind für den interessierenden Energiebereich durch Messung praktisch nicht bestimmt worden. Um durch Rechnung abzuschätzen, für welche Zustände die Anregung aus dem Grundzustand überhaupt möglich ist, wenn die Resonanzbedingung energetisch erfüllt ist, ist die Kenntnis der Quantenzahlen der einzelnen Niveaus (vor allem Drehimpuls J, Parität π und bei deformierten Kernen wie Uran der Projektion K des Drehimpulses auf die körperfeste Symmetrieachse) erforderlich. Diese Daten sind vielfach unbekannt oder widersprüchlich.

Das hat zur Folge, daß sich aus den etwa 140 Zuständen, die für ^{235}U bisher oberhalb 500 keV gefunden wurden, nur wenige als Kandidaten für γ -Resonanzfluoreszenz aussondern ließen. Die folgende Tabelle wurde aufgrund der veröffentlichten Arbeiten über ^{235}U , wie sie in Ref.⁹ zusammengefaßt sind, und einer neueren, sehr umfassenden Arbeit über diesen Kern¹⁰ zusammengestellt. γ -Energien radioaktiver Quellen wurden den bekannten Tabellenwerten^{11,12} entnommen. Dabei wurden folgende Kriterien zugrundegelegt:

- (1) Niveaus: Energie > 500 keV;
Strahlungsmultipolarität zum Grundzustand: E1, M1 oder E2, d.h.
Spins und Paritäten $J^\pi = 5/2^+, 7/2^+, 9/2^+ (E1); 5/2^-, 7/2^-, 9/2^- (M1 \text{ oder } E2);$
 $3/2^-, 11/2^- (E2);$
K-Quantenzahl: Änderung $|\Delta K| \leq 2$, d.h. $3/2 \leq K \leq 11/2$;
- (2) Quellen: Energie möglichst nahe der Resonanzenergie;
Intensität der Linie möglichst groß mit wenigen höherenergetischen γ -Übergängen;
Halbwertszeit geeigneter Dauer und einfache Herstellbarkeit;
Lebensdauer des Zwischenzustands möglichst kurz und Energie des vorhergehenden Prozesses möglichst hoch.

In Tabelle III sind fünf Energieniveaus des ^{235}U und geeignet erscheinende radioaktive γ -Quellen aufgeführt, die aufgrund der gegenwärtig bekannten Daten als Kandidaten in Frage kommen. In der Tabelle sind

Tabelle III. Kandidaten für γ -Resonanzfluoreszenz in ^{235}U

Zustand in ^{235}U				Quelle			Zwischenniveau	
Energie/keV	Übergang	$J^\pi K$	$\gamma = \Gamma_{O4} / \Gamma$	γ -Energie/keV	rel. Int.	Nuklid	$T_{1/2}$	Entstehung
Niveau	Übergang	$J^\pi K$	$\gamma = \Gamma_{O4} / \Gamma$	Ref.	Int.			
1212 ± 2	1313,0 $\pm 0,5$	9/2+5/2	(1,00)	1212,88 $\pm 0,06$	13	0,9%	^{152}Eu	12,5 a ? EC; 0,28 MeV
1116,2 $\pm 0,2$	1115,6 $\pm 0,3$	5/2+5/2	0,11	1115,518 $\pm 0,025$	8	94,7%	^{65}Zn	245 d 0,4 ps EC; 0,24 MeV
921	920,6	11/2-11/2	0,58	920,9 $\pm 0,2$	14	76,9%	$^{184\text{m}}\text{Re}$	165 d ? (EC; 0,50 MeV)
871,3 $\pm 0,3$	-	5/2+3/2	(0)	871,099 $\pm 0,018$	8	50,0%	^{94}Nb	2,35 $\cdot 10^4$ a 2,0 ps IT; 0,70 MeV
769,2	769,12 $\pm 0,15$? ?	0,45	769,2	15	<0,1%	^{152}Eu	12,5 a ? (EC; 0,28 MeV)

in den Spalten 1 bis 4 an Daten des ^{235}U -Systems die ausgewiesene Niveauenergie, die γ -Energie des Grundzustandsübergangs (soweit beobachtet), die für die Berechnung des Wirkungsquerschnitts relevanten Quantenzahlen sowie der Bruchteil Γ_{O4} / Γ angegeben, mit dem sich der Zustand zum Grundzustand abregt. Können andere Übergänge als der zum Grundzustand nicht ausgeschlossen werden oder ist keine Abregung beobachtet worden, so stehen die entsprechenden Zahlen (1) oder (0) in Klammern. Die Spalten 5 bis 11 enthalten die gemessene γ -Energie der Quelle, die Literaturangabe, den Prozentanteil der Linie am gesamten γ -Spektrum, das Isotop, seine Halbwertszeit sowie, soweit bekannt, Halbwertszeit und Entstehung des Zwischenzustands und die dabei freiwerdende Energie, die bei Elektroneneinfang (EC) auf das Neutrino, bei innerem Übergang (IT) auf das γ -Quant übertragen wird. Bei den eingeklammerten Daten ist ungewiß, ob der Einfang des Elektrons direkt oder über Emission von γ -Strahlung zu dem Zwischenzustand führt; daher ist die angegebene Energie hier als obere Grenze zu verstehen. Im übrigen ist noch anzumerken, daß auch die Quantenzahlenzuordnung (Spalte 3) von den Autoren mit Unsicherheiten unterschiedlichen Grades angegeben wird.

Man erkennt, daß alle in die Tabelle aufgenommenen Niveaus E1-Strahlung zum Grundzustand emittieren können außer dem Zustand bei 921keV, der sich durch einen E2-Übergang abregt. - Nachteilig bei der Untersuchung des 1212 keV-Zustandes sind die geringe Intensität im γ -Spektrum des ^{152}Eu und das Vorhandensein höherenergetischer Linien, die bis zu einem Faktor 15 intensiver sind. Dies gilt in verstärktem Maße für die Linie bei 769 keV, die nur in die Tabelle aufgenommen wurde, weil das entsprechende Niveau gleichzeitig mit dem bei 1212 keV untersucht werden kann. Mehr Aussicht auf Erfolg bietet die Anregung des Zustands bei 1116 keV durch eine ^{65}Zn -Quelle; eine Schwierigkeit ist die Diskrepanz zwischen Niveau-

energie und Energie des beobachteten Übergangs, die sich um 600 eV unterscheiden, während die entsprechenden Fehler nur mit 200 eV und 300 eV angegeben sind. Wenn die wahre Energie nahe dem höheren Wert von 1116,2 keV liegt, läßt sich trotz der günstigen Halbwertszeit des Zwischenzustands eine Überlappung mit der 1115,5 keV-Linie des ^{65}Zn mit Sicherheit nicht erreichen. - Eine praktische Schwierigkeit für die 921 keV-Linie liegt in der Tatsache begründet, daß $^{184\text{m}}\text{Re}$ nicht durch Aktivierung mit thermischen Neutronen, sondern nur über (n,2n)- und Prozesse mit geladenen Teilchen, wie z.B. die (α ,n)-Reaktion, hergestellt werden kann. Für die Anwendung des ^{94}Nb auf den 871 keV-Zustand ist aufgrund des niedrigen Querschnitts von 100 mb für thermische Neutronen und die lange Halbwertszeit die erforderliche Aktivität nur über große Substanzmengen zu erreichen.

EXPERIMENT

Deshalb ist das in Abb. 1 skizzierte Experiment zunächst mit einer ^{65}Zn -Quelle (bei Zimmertemperatur) durchgeführt worden. Als Targets substanz dienten 170 g auf 93 % ^{235}U angereichertes UO_2 in einer Schichtdicke von 2 g/cm² unter einem Winkel von 45°, die sonst übliche (günstigere) Ringanordnung des Targets wurde durch eine größere Quellstärke (1 Ci) kompensiert. Als Vergleichsprobe wurde dieselbe Menge natürliches UO_2 in derselben Anordnung verwendet.

Die Ergebnisse lassen bisher keinen über die Statistik hinausgehenden Effekt erkennen. Als obere Grenze für den Resonanzanteil am Wirkungsquerschnitt für elastische Streuung ergibt sich ein Wert von 20 mb. Damit erhält man für die Abweichung von Niveauenergie und γ -Energie der Quelle $\Delta E > 3,0$ eV. Diesem Wert liegt eine Lebensdauer des 1116 keV-Zustands des ^{235}U von 10^{-15} sek zugrunde, das sind zehn Weisskopf-Einheiten. In dieser Annahme steckt eine gewisse Willkür; für 10^{-16} sek erhielte man $\Delta E > 3,5$ eV, für 10^{-14} sek $\Delta E > 2,3$ eV. Für den Breitenparameter wurde der Wert $\delta = 1,2$ eV angenommen.

DISKUSSION

Es wäre Zufall gewesen, wenn bei den großen Unsicherheiten für die gemessenen Energiewerte gleich das erste Experiment dieser Art ein positives Ergebnis erbracht hätte. Man muß sich auch vor Augen führen, daß für das vorliegende Beispiel die Abweichung der beiden Energien nur 0,33 eV betragen darf, wenn der Wirkungsquerschnitt für Resonanzstreuung den für Rayleigh-Streuung um den Faktor 100 übersteigen soll. In Anbetracht des geringen Meßaufwandes sollte aber trotzdem der Versuch unternommen werden, auch andere Kandidaten zu untersuchen. Durch bloßes Erhitzen der (festen) Quelle auf 1000°C läßt sich der Breitenparameter δ etwa um den Faktor 2 erhöhen; verwendet man jedoch statt einer festen Quelle ein molekulares Gas, so wird ein Teil der Ladung des nach dem Elektroneneinfangprozeß aufgrund mehrfacher Auger-Prozesse hochionisierten Atoms auf die Partner übertragen, und Coulomb-Abstoßung führt zu Dissoziation und überträgt dabei auf das Ion des Quellenmaterials desto mehr Impuls, je schwerer die Partner sind. Dieser als Coulomb-Fragmentation¹⁷ bekannte Effekt ist für $^{65}\text{ZnCl}_2$ gemessen worden und vergrößert δ bei 850°C auf 12,4 eV. Durch Ersetzen des Cl durch Br oder J kann man noch größere Breiten erwarten. - Quellen, die schon bei der Kernreaktion schwere Teilchen emittieren, erzeugen in der Regel so große Breiten, daß der Faktor $1/\delta$ in dem Ausdruck für σ an Bedeutung gewinnt. Trotzdem sollten auch die mit radioaktiven Quellen erzeugten Reaktionen (α , $\alpha'\gamma$), (α ,p γ) und (α ,n γ) auf ihre Möglichkeiten für die γ -Resonanzfluoreszenz an ^{235}U untersucht werden.

Ich danke Herrn Dr. Dippel für die Bereitstellung des Urans und die Anfertigung der Streuproben und Herrn Rottmann für die Aktivierung der ^{65}Zn -Quelle.

LITERATUR

- ¹ E. Jacchia, S. Finzi in *Peaceful Uses of Atomic Energy*, United Nations, New York, und IAEA, Wien, 1972, Band 9 p. 367.
- ² C. Beets et al., *ibid.*, p. 449.
- ³ G.R. Keepin, R.L. Bramblett, W.A. Higinbotham, *ibid.*, p. 413.
- ⁴ A. von Baeckmann et al., *ibid.*, p. 435.
- ⁵ E. Storm, H.I. Israel, *Nuclear Data A* 7 (1970) 565.
- ⁶ F.R. Metzger in O.R. Frisch ed., *Progress in Nuclear Physics* 7 (1959) 54.
- ⁷ A.H. Snell in K. Siegbahn ed., *Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*, North Holland, Amsterdam, 1965, Band 2, p. 1545.
- ⁸ R.G. Helmer, R.C.-Greenwood, R.J. Gehrke, *Nucl. Instr. and Meth.* 96 (1971) 173.
- ⁹ A. Artna-Cohen, *Nuclear Data B* 6 (1971) 287.
- ¹⁰ F.A. Rickey, E.T. Journey, H.C. Britt, *Phys. Rev. C* 5 (1972) 2072.
- ¹¹ M.A. Wakat, *Nuclear Data A* 8 (1971) 445.
- ¹² C. Meixner, Jül-812-RX (1971).
- ¹³ C. Meixner, Jül-811-RX (1971).
- ¹⁴ A.H. Kukoc et al., *Nucl. Phys. A* 143 (1970) 545.
- ¹⁵ L. Varnell, J.D. Bowman, J. Trischuk, *Nucl. Phys. A* 127 (1969) 270.
- ¹⁶ J.M. Blatt, V.F. Weisskopf, *Theoretical Nuclear Physics*, Wiley, New York, 1952, p. 802.
- ¹⁷ F.R. Metzger, *Phys. Rev. Letters* 18 (1967) 434.