

Spaltung und Transfer bei der Streuung von $^{129,132,136}\text{Xe}$ -Ionen
an ^{238}U unterhalb der Coulombbarriere.

G. Franz, W. Bröchle, H. Folger, B. Haefner, J. Klemm, J. V. Kratz, W. Weber.

GSI Darmstadt

Anregungsfunktionen für Transfer und Spaltung im System $^{132}\text{Xe} + ^{238}\text{U}$ unterhalb der Coulombbarriere¹ wurden bis zu Energien von 70% der Barrierenenergie mit radiochemischen Methoden gemessen. Nach der Bestrahlung von ^{238}U (1.5 mg/cm^2) wurden Bildungsquerschnitte für die Spaltprodukte $83 \text{ min} - ^{139}\text{Ba}$ und $16.8 \text{ h} - ^{97}\text{Zr}$ und für die Transferprodukte $23 \text{ min} - ^{239}\text{U}$, $14.1 \text{ h} - ^{240}\text{U}$ und $6.75 \text{ d} - ^{237}\text{U}$ durch Aktivitätsmessung in einem β -Antikoinzidenzzähler mit sehr niedrigem Untergrund bestimmt. Die Messungen bei $E/B = 0.7$ sind noch nicht vollständig ausgewertet. Die Abbildung zeigt, daß die Querschnitte für die energetisch bevorzugten Transferkanäle (^{237}U , $Q_{\text{gg}} = +0.3 \text{ MeV}$ und ^{239}U , $Q_{\text{gg}} = -4.1 \text{ MeV}$) im gesamten Energiebereich über den Spaltquerschnitten liegen. Sequentielle Spaltung nach Transfer kann demnach zunächst nicht ausgeschlossen werden. Mit Sicherheit ist der starke Anstieg der Spaltquerschnitte oberhalb $E/B = 0.9$ auf sequentielle Prozesse zurückzuführen. Das gleichzeitige Abflachen der Anregungsfunktionen für die Transferkanäle in der Nähe der Barriere weist auf das Öffnen weiterer inelastischer Transferkanäle hin. Zählerexperimente² im System $^{136}\text{Xe} + ^{238}\text{U}$ ergeben, daß die beobachteten Spaltreignisse unterhalb $E/B \approx 0.85$ mit einem konstanten Q -Wert von $-(7.5 \pm 1.0) \text{ MeV}$ beobachtet werden, der mit der Annahme eines dominanten Beitrages von Coulombspaltung zum Spaltquerschnitt verträglich ist. Nach Habs et al.² kann anhand der beobachteten Laborenergie des rückgestreuten Xe-Projektils sequentielle Spaltung nach Transfer zum ^{237}U und ^{240}U , nicht aber die sequentielle Spaltung nach Transfer zum ^{239}U ausgeschlossen werden. Dabei wird angenommen, daß im Falle der sequentiellen Spaltung nach Transfer der Energieverlust ($-Q$) bei gleichbleibender Anregungsenergie des Urans von 6 MeV (Spaltbarriere) wesentlich vom Q_{gg} -Wert für den betrachteten Transferkanal abhängt.

Um den Einfluß verschiedener Q_{gg} -Werte auf Transfer- und Spaltquerschnitte weiter zu beleuchten, wurden zusätzliche Bestrahlungen mit ^{129}Xe und ^{136}Xe durchgeführt. Die Daten sind ebenfalls in der Abbildung dargestellt. Die veränderten Q_{gg} -Werte für den Transfer im System $^{129}\text{Xe} + ^{238}\text{U}$ ($Q_{\text{gg}}(^{237}\text{U}) = +3.1 \text{ MeV}$, $Q_{\text{gg}}(^{239}\text{U}) = -2.1 \text{ MeV}$) führen zu einer deutlichen Erhöhung beider Transferquerschnitte gegenüber den Querschnitten im $^{132}\text{Xe} + ^{238}\text{U}$ System, ohne daß der Spaltquerschnitt signifikant mitwächst. Entsprechend werden die Transferwahrscheinlichkeiten im System $^{136}\text{Xe} + ^{238}\text{U}$ ($Q_{\text{gg}}(^{237}\text{U}) = -2.3 \text{ MeV}$, $Q_{\text{gg}}(^{239}\text{U}) =$

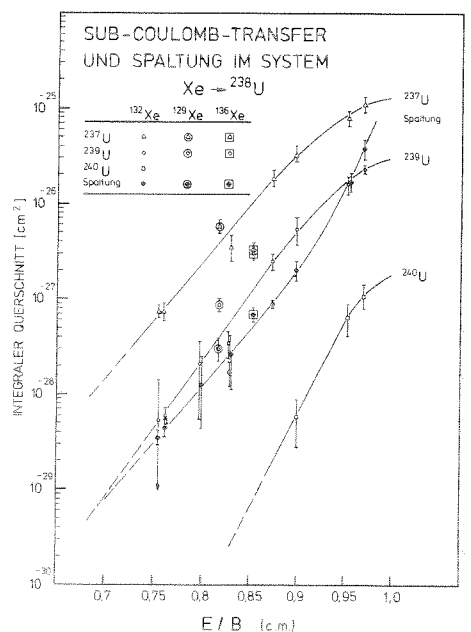
-3.2 MeV) gegenüber $^{132}\text{Xe} + ^{238}\text{U}$ massiv verändert, während der Spaltquerschnitt wiederum annähernd auf derselben Anregungsfunktion liegt. Wenn der Spaltprozess im betreffenden Energiebereich dominant durch Zerfall eines oder mehrerer Transferprodukte zu erklären wäre, so sollten die Spaltquerschnitte ähnlich signifikant wie die Transferquerschnitte auf die unterschiedlichen Q_{gg} -Werte reagieren. Ein dominanter Beitrag von Coulombspaltung zu den Spaltquerschnitten unterhalb $E/B = 0.85$ scheint deshalb mit den Daten verträglich zu sein. Die Spaltquerschnitte werden bei $E/B = 0.85$ von der Theorie von Oberacker et al.³ quantitativ reproduziert, der Verlauf der Anregungsfunktion zu niedrigeren Energien ist im Experiment allerdings deutlich flacher als von Oberacker vorausgesagt. Mit Hilfe eines von Gardès⁴ für quasi-elastische Transferreaktionen entwickelten Modells soll versucht werden, den Einfluß energetischer und geometrischer Parameter auf die hier beobachteten Transferwahrscheinlichkeiten zu studieren.

¹G. Franz et al., GSI-Jahresbericht 1976, GSI-J-1-77, S. 41

²D. Habs et al, Z. Physik A283, 261 (1977).

³V. Oberacker et al, J. Phys. 63, L 271 (1977).

⁴D. Gardès, Thèse, IPN Orsay (1976), unveröffentlicht



Anregungsfunktionen für Spaltung und Transfer im System $^{132}\text{Xe} + ^{238}\text{U}$ unterhalb der Coulombbarriere. Einzelne Meßwerte für $^{136}\text{Xe} + ^{238}\text{U}$ und $^{129}\text{Xe} + ^{238}\text{U}$ sind in dieselbe Abbildung eingetragen.

Ladungs-Asymmetrie-Äquilibration in Reaktionen von
 $^{129,132,136}\text{Xe}$ mit ^{197}Au

J. V. Kratz, H. Ahrens, W. Bögl, W. Brüche, G. Franz,
H. Gäggeler, M. Schädel, I. Warnecke, G. Wirth
GSI Darmstadt

G. Klein, M. Weis

Institut für Kernchemie, Universität Mainz

1. Geschwindigkeit der N/Z -Äquilibration

Nach Beschuß von dicken ^{197}Au -Targets mit ^{129}Xe , ^{132}Xe und ^{136}Xe bei 5.9 MeV/A wurden integrale Querschnitte $\sigma(Z,A)$ für individuelle Isotope ($35 \leq Z \leq 84$) radiochemisch bestimmt.¹ Die Population von Isotopen eines gegebenen Elements in energiedämpften Kollisionen wird durch die Gauß-Verteilung $P(A-A_p) \sim (2\pi\sigma_A^2)^{-1/2} \exp(-(A-A_p)^2/2\sigma_A^2)$ beschrieben, wobei die wahrscheinlichste Massenzahl $A_p(Z)$ das mittlere N/Z -Verhältnis als Funktion von Z definiert. Als Kriterium für die vollständige Gleichgewichtseinstellung des N/Z -Freiheitsgrades sagt ein einfaches Modell¹ eine fast parallele Verschiebung der relativen N/Z -Verhältnisse von neutronen-arm zu mehr und mehr neutronen-reich voraus, wenn die Projektile ^{132}Xe und ^{136}Xe anstelle von ^{129}Xe verwendet werden (siehe Abbildung). Unsere einfachen Rechnungen unterschätzen den TKE-Verlust im Bereich symmetrischer Fragmentationen, wo sich Kerndeformationen stark auswirken¹, die berechnete relative Verschiebung der N/Z -Verhältnisse sollte aber von den absoluten Ungenauigkeiten der Rechnungen unabhängig sein. Tatsächlich zeigen die in der Abbildung ebenfalls eingetragenen experimentellen Daten für ^{129}Xe , ^{132}Xe und $^{136}\text{Xe} + ^{197}\text{Au}$ für fast alle Transferkanäle ΔZ die erwartete relative Verschiebung, woraus auf eine vollständige Äquilibration der N/Z -Verhältnisse geschlossen wird. Für sehr kleine Transfers ($\Delta Z < 1$) ist die Gleichgewichtseinstellung offenbar noch nicht erreicht: Für $Z=79$ sind die N/Z -Verhältnisse innerhalb der Fehlergrenzen identisch und zeigen eine scharfe Struktur in Richtung auf das N/Z -Verhältnis des Targetkerns ^{197}Au . Die (unvollständigeren) Daten um $Z=54$ deuten eine entsprechende Peakstruktur in Richtung auf das unveränderte N/Z -Verhältnis des Projektils an. Nimmt man als Grenzbedingung für äquilibrierte N/Z -Verhältnisse $\Delta Z \sim 1$ an, so kann mit Hilfe der von Huizenga² für das sehr ähnliche System $^{136}\text{Xe} + ^{209}\text{Bi}$ bestimmten Energieverlustrate und dem experimentellen Ladungsdiffusionskoeffizienten auf eine charakteristische Zeit von $\sim 1 \times 10^{-22}$ sec für die Ladungs-Asymmetrie-Äquilibration geschlossen werden. Nach Brosa und Krappe³ beweist das, daß Reibungsmechanismen bei der N/Z -Gleichgewichtseinstellung (im Gegensatz zum Massentransfer) keine wesentliche Rolle spielen.

2. Absolute Lage und Breite der Isotopendispersionen

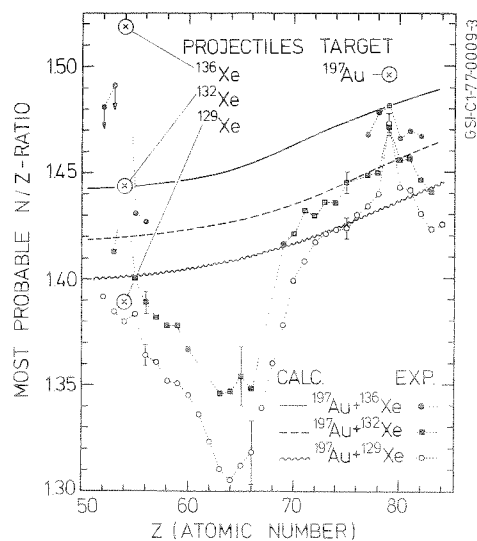
Verschiedene Modell-Voraussagen über die absolute Lage der primären N/Z -Verhältnisse wurden mit den experimentellen Daten verglichen. Die vernünftigste Beschreibung wird mit der von Volkov⁴ angewandten "Q_{gg}-Systematik" mit Paarkorrektur erhalten. Um die Breiten $\sigma_A^2(Z)$ der Isotopendispersionen systematisch zu untersuchen, wurde damit begonnen, dünne ^{197}Au -Targets (1.0 mg/cm^2) mit ^{132}Xe -Ionen unterschiedlicher Einschubenergie zu bestrahlen. Die bei 6.7 MeV/A beobachteten Breiten $\sigma_A^2(Z)$ zeigen dieselbe Abhängigkeit vom mittleren Energieverlust ($-Q(Z)$) wie die bei 5.9 MeV/A gemessenen Breiten. Wir hoffen, aus der Analyse dieser Breiten Aussagen über die primären Ladungs-Asymmetrie-Fluktuationen zu gewinnen, um zu entscheiden, ob der schnelle N/Z -Ausgleich mit anderen kollektiven Freiheitsgraden gekoppelt ist.

¹J. V. Kratz et al., Phys. Rev. Lett. **39**, 984 (1977).

²J.R. Huizenga et al., Phys. Rev. Lett., **37**, 855 (1976).

³U. Brosa, H. J. Krappe, Z. Physik, **A284**, 65 (1978).

⁴V. V. Volkov, Nashville Conf., Vol. II, p. 363 (1974).



Berechnete Gleichgewichts- N/Z -Verhältnisse (Linien) und experimentelle N/Z -Werte (Punkte) für Produkte aus inelastischen Kollisionen von $^{129,132,136}\text{Xe}$ mit ^{197}Au bei 1.06x8. Die N/Z -Verhältnisse der Projektile und des Targets sind ebenfalls eingezeichnet.

Hochspinisomere des Hafniums aus der Reaktion $^{40}\text{Ar} + \text{W}$

W. Kurcewicz, J. Żylicz

Instytut Fizyki Doswiadczałnej, Uniwersytet Warszawski

N. Kaffrell, K. Sümmerer, N. Trautmann

Institut für Kernchemie, Universität Mainz

H. Ahrens, H. Folger

GSI Darmstadt

Zur Untersuchung der Bildungsquerschnitte von Hochspinisomeren des Hafniums, die Aufschluß über den Drehimpulstransfer bei quasi-elastischen und tief-inelastischen Kollisionen komplexer Kerne geben können, wurde ein dickes Target aus natürlichem Wolfram mit 7,6 MeV/A ^{40}Ar -Ionen bestrahlt und nach einer Abklingzeit von 2 h die Hafnium-Fraktion chemisch¹ isoliert. Die Bestrahlungszeit betrug 3,8 h bei einem integralen Fluß von $1,74 \cdot 10^{16}$ Teilchen. Die erhaltene Aktivität wurde über sechs Monate mit Hilfe von γ -Einzel- und γ - γ -Koinzidenzmessungen untersucht. Zuordnungen zu den einzelnen Hafniumnukliden wurden mittels bekannter γ -Linien und Halbwertszeiten durchgeführt. Besonderer Wert wurde auf die Identifizierung der in der Tabelle angegebenen Hochspinisomere des Hafniums gelegt.

Hochspinisomere des Hafniums

A	Energie (keV)	$T_{1/2}$	J^π
177	2740,0	51,4 min	$37/2^-$
178	2447,5	31 y	16^+
179	1105,7	25,1 d	$25/2^-$
180	1141,6	5,5 h	8^-
182	1172,9	61,5 min	8^-

Bei der Berechnung der Wirkungsquerschnitte wurden Korrekturen für die chemische Ausbeute und für kumulative Beiträge zu der Hafniumaktivität durchgeführt. Für die effektive Reichweite der Ar-Ionen in Wolfram, resultierend aus der Teilchenenergie und der Coulomb-schwelle, wurden $21,2 \text{ mg/cm}^2$ eingesetzt.

Die experimentell erhaltenen Bildungsquerschnitte für die Grundzustände und Hochspinisomere sind zusammen mit der theoretisch vorausgesagten Massenverteilung der Hafniumisotope bei einer inelastischen Reaktion in der Abbildung dargestellt. Die theoretische Kurve beruht auf der Volkov'schen Q_{gg} -Systematik² und statistischen Evaporationsberechnungen³. Während sich für die leichteren Hafniumisotope eine recht gute Übereinstimmung zeigt, ergeben sich bei den schwereren Nukli-

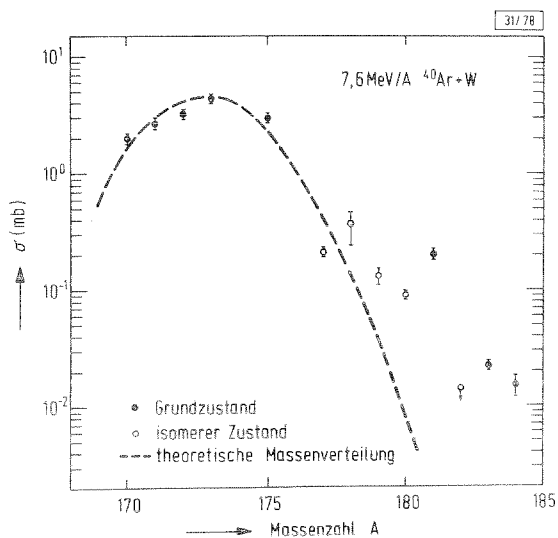
den höhere Wirkungsquerschnitte, die durch einen Beitrag von quasi-elastischen Reaktionen erklärt werden können. Bei den Hochspinzuständen zeigt sich nicht nur, daß diese in inelastischen Reaktionen erzeugt werden, sondern bemerkenswert sind auch die relativ hohen Bildungsquerschnitte. Dieses Ergebnis ist in Übereinstimmung mit den Resultaten von Kratz et al.⁴, die die Produktion von Goldisomeren bei der Reaktion $\text{Xe} + \text{Au}$ untersuchten.

¹H. Ahrens et al., GSI Jahresbericht 1976, S. 86 (1977)

²V.V. Volkov, Nukleonika 21, 53 (1976)

³ALICE-Code, modifizierte Version, W. Reisdorf, private Mitteilung

⁴J.V. Kratz, W. Bröchle, I. Dreyer, G. Franz, G. Wirth, M. Schädel und M. Weis, in Communications to the European Conference on Nuclear Physics with Heavy Ions, Caen, 1976, S. 175



Experimentelle Wirkungsquerschnitte für die Produktion von Hafniumnukliden in der Reaktion $^{40}\text{Ar} + \text{W}$ und theoretisch vorausgesagte Massenverteilung für Produkte tief-inelastischer Reaktionen.

Study of the heavy products in the reaction of $^{84}\text{Kr} + ^{238}\text{U}$ R. Lucas, J. Poitou
DPHN - CEN SaclayJ. V. Kratz, G. Wirth
GSI Darmstadt

Mass distributions of the products from the reaction of 605 MeV ^{84}Kr with ^{238}U have been investigated by Kratz et al. in 1974.¹ In this work yields of unknown origin were observed around mass $A=195$ (fig. 1). Since that time such excess yields named "gold finger" have been seen in Xe + U experiments around $A=210$ and attributed to ordinary deep inelastic reaction products² that have survived deexcitation without undergoing fission. Deubler and Dietrich³ have suggested that the observed yields might be attributed to a fusion between the projectile and one of the fragments arising from fission of the U target. One would expect the products from this mechanism to be forward peaked in the laboratory. In order to get some more information on the gold finger we performed a new Kr + U experiment at a lower beam energy of 522 MeV. The aim was to check whether any $A > 200$ products would survive fission at a lower excitation energy. Two kinds of measurements have been made:

1) a thin target ($500 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) was located at the centre of an irradiation chamber, the walls of which are covered by catcher foils to measure in a single irradiation an angular distribution ranging from 10^0 to 110^0 in the laboratory system.

2) At the same time a second target was located behind the chamber followed by a stack of aluminium foils in order to measure projected ranges for all products including products from 0^0 to 10^0 which are not detected in the other measurement.

After bombardment products were identified by the X-ray lines emitted in their radioactive decay. All the isotopes with $185 < A < 210$ present broad angular distributions around $\theta=45^0$. There is no special finger for the products around $A \sim 195$ and no measurable forward peaking. Also in the projected ranges experiment we found the same mass distribution and thus no forward peak in the gold finger region. We conclude that there is no significant contribution from a fission-fusion mechanism to the observed yields in the mass region $A=185$ to 210.

The measured integral yields are plotted versus mass number in fig. 1. Some of them represent only a fraction of the total mass yields and await corrections for contributions of isotopes that cannot be detected by X-ray measurements. The comparison with the results at 605 MeV (fig. 1) shows that we obtain higher cross sections for all deep inelastic heavy products and

lower cross sections for the fission products. This might mean that the fission probability P_f of the "quasi-U" nuclei is higher at 605 MeV than at 522 MeV. In order to check this hypothesis we evaluated the fission probability for ^{213}At and ^{198}Hg using the prescription given by Moretto⁴ and liquid drop fission barriers.⁵ Our calculations indicate that the increase in excitation energy has less influence on P_f than the increase in the angular momenta between 522 and 605 MeV. In the case of At nuclei P_f is markedly enhanced at 605 MeV. For Hg nuclei P_f remains rather low unless the angular momentum is very high. These calculations explain at least qualitatively the experimental results in the usual frame of deep inelastic collisions.

¹J. V. Kratz et al., Phys. Rev. Lett. **33**, 502 (1974).

²R. J. Otto et al., Phys. Rev. Lett. **36**, 135 (1976).

³H. H. Deubler, K. Dietrich, Phys. Lett. **62**, 369 (1976).

⁴L. G. Moretto, Rochester Symposium 1973, Vol I, p. 329

⁵S. Cohen, F. Plasil, W. J. Swiatecki, Ann. Phys. **82**, 557 (1974).

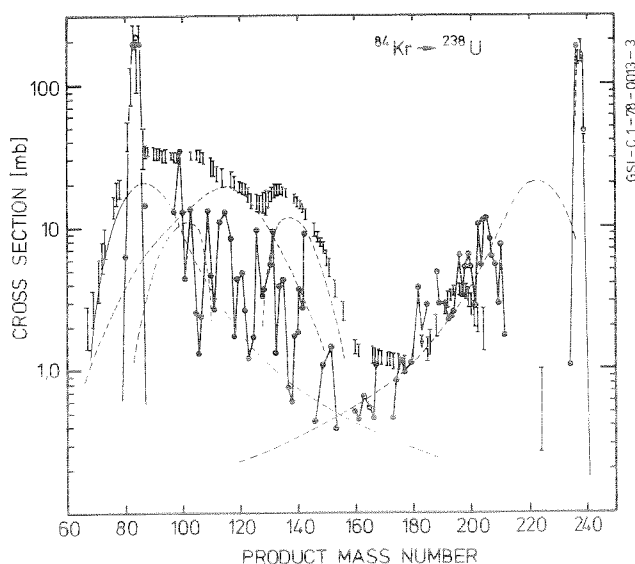


Fig. 1. Mass yields (vertical bars) for $^{84}\text{Kr} + ^{238}\text{U}$ at ≤ 605 MeV and decomposition into various reaction components (Ref. 1). Superimposed are cumulative and partially cumulative yields at 522 MeV (closed circles).

Investigations on the formation mechanism of individual isotopes in $^{132}\text{Xe} + ^{197}\text{Au}$ collisions.

M. Boloré, R. Lucas, J. Poitou, H. Nifenecker

DPHn - CEN Saclay

W. Brüchle, J. V. Kratz, G. Wirth

GSI Darmstadt

The investigation of the $^{132}\text{Xe} + ^{197}\text{Au}$ reaction at 6.9 MeV/A using catcher foil techniques and off-line X-ray, γ -ray and X_γ -coincidence measurements¹ was continued by the measurement of recoil ranges at given lab. angles. A thin target ($300 \mu\text{g}/\text{cm}^2$) was located in the centre of a cylindrical irradiation chamber, the walls of which were covered by stacks of mylar foils (typically 3×0.3 , 1×0.8 and $1 \times 1.6 \text{ mg}/\text{cm}^2$). This way, it was possible to measure in a single irradiation (6h) the distribution in lab. angle and recoil range for individual isotopes ($30 \leq Z \leq 84$) between 25° and 65° in 10° intervals. The gross features of the reaction as observed in the preceding experiment¹ are confirmed: The angular distributions are side-peaked even for elements far removed from the entrance channel.

In order to obtain information complementary to radiochemical results on the same system² we have focused our evaluation on a special topic so far: What is the energy loss associated with the formation of the 2^- ground states and the 12^- isomeric states of some odd-odd Au isotopes (the formation of the 2^- states was assigned to quasi-elastic processes and the formation of the 12^- isomers to damped collisions in Refs. 2,3). Results related to this question are illustrated in Fig. 1 in the form of velocity diagrams. The geometrical setup of the scattering chamber is reproduced by indicating the size and thickness of each catcher foil by the limiting laboratory angles and the lab. velocities corresponding to the foil thicknesses. In Fig. 1a we have denoted in each differential area the number of decays per unit area of $6.2 \text{ d} - ^{196g}\text{Au}(J^\pi=2^-)$; the corresponding values for $9.7 \text{ h} - ^{196m}\text{Au}(J^\pi=12^-)$ are indicated in Fig. 1b. If one transforms the histogram-like three dimensional cross section surface into a smooth surface it is possible to determine the location of the maximum cross section as indicated by the black dots in Fig. 1. The 2^- state shows a rather sharp peak at 116° (c.m.) which corresponds exactly to the grazing angle for the heavy fragment. The 12^- state shows a broader distribution in c.m. angles ($114^\circ - 105^\circ$). The connection of these locations with the point of the c.m. velocity vector defines the c.m. velocity vectors for ^{196m}Au and ^{196g}Au . It is immediately evident from Fig. 1 that their kinetic energies are different. The associated TKE loss (light + heavy fragment) results as 0 MeV for ^{196g}Au and to values between 35 and 120 MeV for ^{196m}Au . Very similar

results are obtained for $^{198g}\text{Au}(2^-)$ and $^{198m}\text{Au}(12^-)$. It is thus clear that the formation of the 2^- ground states is predominantly associated with quasi-elastic scattering while the formation of the 12^- states occurs in damped collisions. This result is in agreement with the conclusions of Refs. 2,3.

Although the average c.m. kinetic energies for all isotopes of a given element originating from the damped collision process are rather similar, a decrease in c.m. energies can be seen for the most neutron-deficient isotopes. Qualitatively, this observation reflects the effect of the dispersion in Q-values on the population of product isotopes through evaporation of different amounts of neutrons from the primary fragments. A quantitative analysis of this effect is relevant for the interpretation of the variances $\sigma_A^2(Z)$ of isotope dispersions of given elements in radiochemical reaction studies which are being performed in order to learn about the degree of charge asymmetry fluctuations in damped collisions.⁴

¹M. Boloré et al., GSI Jahresbericht 1976, GSI-J-1-77, p. 48 (1977).

²J. V. Kratz et al., Phys. Rev. Lett. **39**, 984 (1977).

³J. V. Kratz et al., Communications to the European conf. on Nucl. Phys., Caen 1976, p. 175

⁴J. V. Kratz et al., this report, p. 36.

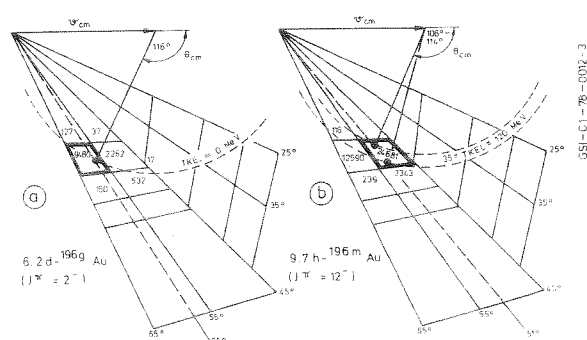


Fig. 1 Velocity diagrams for (a) ^{196g}Au and (b) ^{196m}Au formed in the reaction of 908 MeV ^{132}Xe with ^{197}Au . For explanation see text.

Bildungsquerschnitte für Transuraneisotope in der Reaktion
von $\leq 7.5 \text{ MeV/A}$ ^{238}U mit ^{238}U

M. Schädel, H. Ahrens, W. Brüche, G. Franz, H. Gäggeler, J. V. Kratz, I. Warnecke, G. Wirth
 GSI Darmstadt

G. Herrmann[†], N. Trautmann, M. Weis
 Institut für Kernchemie, Universität Mainz

Die Messung von Wirkungsquerschnitten $\sigma(Z, A)$ von Produkten der Reaktion von $1785 \text{ MeV } ^{238}\text{U}$ -Ionen mit dicken ^{238}U -Targets¹ wurde abgeschlossen. Die Produktverteilung ergibt eine Aufteilung des Reaktionsquerschnitts ($\bar{\sigma}_p = 960 \text{ mb}$) auf quasi-elastische Prozesse (58%) und gedämpfte Kollisionen (42%). Für Produkte aus gedämpften Kollisionen wird eine größere Überlebenswahrscheinlichkeit als in $\text{Kr} + \text{U}$ oder $\text{Xe} + \text{U}$ Experimenten beobachtet,¹ die sich u.a. darin äußert, daß das Maximum der Z-Verteilung der überlebenden Uran-ähnlichen Fragmente bei $Z \approx 90$ liegt, während sequentielle Spaltprozesse in den Reaktionen $\text{Kr} + \text{U}$ und $\text{Xe} + \text{U}$ das Maximum zu leichteren Elementen verschieben. Um die Überlebenswahrscheinlichkeit der schwersten Transferprodukte in $\text{U} + \text{U}$ -Stößen zu untersuchen, wurden nach einer eintägigen Strahlzeit mit einem integralen Fluß von 7.3×10^{15} Teilchen (maximal 2×10^{11} Teilchen/sec) Aktiniden-Fractionen chemisch isoliert² und mehrere Monate auf α - und Spontanspaltungszerfälle untersucht. Wirkungsquerschnitte für einige Transcurium-Isotope werden in der Abb. dargestellt und mit entsprechenden Daten für $\text{Xe} + \text{U}$ verglichen. Zur Analyse der $\text{U} + \text{U}$ Daten haben wir für die komplementären Elemente Rn-Cf, At-Es und Po-Fm die N/Z -Population der primären Fragmente aus den gemessenen Produktverteilungen wie folgt rekonstruiert: 1) Das wahrscheinlichste N/Z -Verhältnis wird nach Volkov's Q_{gg} -Systematik mit Paarkorrekturen berechnet. 2) Die gemessene Breite der Produktverteilung σ_{Prod}^2 für Rn, At und Po entsteht durch Überlagerung dreier Dispersionen $\sigma_{\text{Prod}}^2 = \sigma_{\text{Frag}}^2 + \sigma_{\text{E}}^2 + \sigma_{\text{v}}^2$, wobei σ_{Frag}^2 die Breite der primären Isotopenverteilung, σ_{E}^2 die Varianz in der Produkt-Massenzahl durch Abdampfung verschiedener Zahlen von Neutronen von verschieden stark angeregten Fragmenten derselben Massenzahl und σ_{v}^2 die Fluktuation in der Zahl der abgedampften Neutronen bei gegebener Anregungsenergie bedeuten. Die Population eines gegebenen Aktiniden-Isotops wird dann durch die Gleichung

$$Y(A, Z) = \sum_{i=1}^k \left(\frac{\Gamma_n}{\Gamma_n + \Gamma_f} \right)^{x_i} \cdot Y_i(A', Z) \int_{E_a}^{E_b} \frac{d\sigma}{dE} p_{x_i} dE$$

beschrieben, wobei p_{x_i} die Wahrscheinlichkeitsverteilung für die Abdampfung von genau x_i Neutronen mit $x_i = (A' - A)$ angibt, $d\sigma/dE$ die Dispersion in der Anregungsenergie, und $Y_i(A', Z)$ die relative Ausbeute des primären Fragments bedeutet. Die $\Gamma_n/\Gamma_{\text{tot}}$ -Verhältnisse werden nach Sikkeland³ berechnet. Übereinstimmung mit dem Experiment ergibt sich, wenn sehr schmale Primärverteilungen (kleine Temperaturen) und breite Q-Wert-Dispersionen

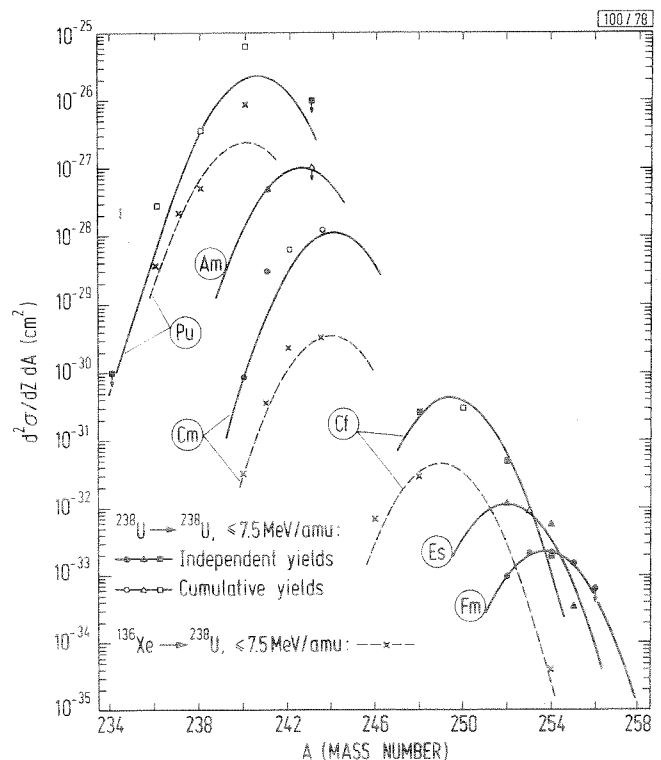
angenommen werden. Die Rechnungen zeigen ferner, daß die überlebenden Transcurium-Isotope aus den niederenergetischen Ausläufern der Q-Wert-Verteilungen stammen, und daß für die Elemente mit $Z_h > 98$ ($Z_l < 86$) angenommen werden muß, daß die gesamte Anregungsenergie zunehmend im schweren Fragment konzentriert ist. Man kann dies möglicherweise auf die gleichzeitige Bildung eines fast magischen leichten Fragments ($Z_l \approx 82$) zurückführen, das nur sehr wenig Anregungsenergie aufnimmt, solange der Q-Wert klein genug ist, damit Schaleneffekte wirksam sein können. Die unproportionale Aufteilung der Anregungsenergie auf leichtes und schweres Fragment könnte sich für Fragmentpaare in der Nähe von $Z = 114,70$ umkehren, was für die Synthese von superschweren Kernen höchst erwünscht wäre.

[†]Auch GSI Darmstadt.

¹J.V. Kratz et al., GSI Jahresbericht 1976, GSI-J-1-77, S. 60 (1977) und Preprint (1978).

²M. Schädel et al., dieser Bericht, S. 177

³T. Sikkeland et al., Phys. Rev. 172, 1232 (1968)



Wirkungsquerschnitte für Aktinidenisotope aus der Reaktion von $\leq 7.5 \text{ MeV/A}$ ^{238}U mit ^{238}U . Zum Vergleich sind entsprechende Daten für die Reaktion von 7.5 MeV/A ^{136}Xe mit ^{238}U angegeben.

Suche nach superschweren Elementen in der Reaktion von ^{136}Xe mit ^{238}U

H. Gäggeleer, W. Brüchle, H. Ahrens, H. Folger, G. Franz, J. V. Kratz, M. Schädel, I. Warnecke, G. Wirth
 GSI Darmstadt

N. Trautmann, G. Herrmann⁺, N. Kaffrell, P. Peuser, G. Tittel, M. Weber, M. ZendeI
 Institut für Kernchemie, Universität Mainz

Auf der Nashville Konferenz berichtete G. N. Flerov¹ über die Beobachtung einer Spontanspaltungs-Aktivität von 150 d Halbwertszeit bei der Reaktion von 900 MeV ^{136}Xe mit ^{238}U , die superschweren Elementen zugeordnet wurde; als Bildungsquerschnitt wurde 10^{-33} cm^2 angegeben.

Wir haben versucht, diese Beobachtung mit den am UNILAC erreichbaren, hohen ^{136}Xe Intensitäten (ca. 10^{12} s^{-1}) zu bestätigen. Dazu wurden zwei Bestrahlungen dicker Uran-targets ($300 \text{ mg/cm}^2 \text{ U}$ auf wassergekühlter Cu-Unterlage) mit $7,5 \text{ MeV/u } ^{136}\text{Xe}$ durchgeführt, bei denen Dosen von 1×10^{17} Teilchen in rund 24 h erreicht wurden. Da superschwere Elemente flüchtig sein könnten, wurde vom Target aus in Strahlrichtung ein Silberzylinder montiert, um während der Bestrahlung verflüchtigte Bestandteile dort zu kondensieren. Nach den Bestrahlungen wurden die Targets mit zwei unabhängigen chemischen Methoden² verarbeitet. Sie erlauben, Fraktionen, welche die Elemente 108-111 und 112-116 (naßchemisches Verfahren) sowie 112-117 (gaschemisches Verfahren) enthalten sollten, auf dünnen VYNS- bzw. Nickelfolien zu präparieren. Die beim Lösen bzw. Ausheizen des Targets freigesetzten Gase (Element 118) wurden in Kühlfallen aufgefangen. Zusätzlich wurden die Aktiniden in die Fraktionen Pu, Am, Cm, Bk-Fm und Md aufgetrennt.³ Der Silberzylinder wurde gaschemisch aufgearbeitet. Dabei zeigte sich, daß ca. 20% des gebildeten Poloniums, ein Vertreter leichtflüchtiger Reaktionsprodukte, während der Bestrahlung verflüchtigt wurde.

Die Präparate wurden mit zwei Sperrschichtdetektoren auf α - und Spontanspaltaktivität gemessen. Es wurde sowohl nach single wie koinzidenten Spaltereignissen im Energiebereich 25 - 150 MeV gesucht; die Nachweiswahrscheinlichkeit für koinzidente Ereignisse betrug 40%. Die in

Kühlfallen kondensierten Gase wurden mit einem Neutronenmultiplizitätszähler gemessen, der mit $30 \text{ } ^3\text{He}$ -Zählern bestückt ist.

Die Resultate sind in der Tabelle zusammengestellt. In keiner Fraktion superschwerer Elemente wurden Spaltfragmentkoinzidenzen beobachtet. Die α -Spektren zeigen starke Aktivitäten von Isotopen des Bi, Po und At mit α -Linien bis zu 10,55 MeV (^{212}Po).

Die in der Tabelle angegebenen oberen Grenzen für Bildungsquerschnitte wurden unter folgenden Annahmen berechnet: (1) eine Spaltfragmentkoinzidenz beobachtet, (2) chemische Ausbeute 50%, (3) konstante Anregungsfunktion zwischen Einschußenergie und Coulombbarriere (5,3 MeV/u). Auch die im Neutronenzähler gemessene Gasfraktion zeigte keine signifikant über dem Untergrund liegende Aktivität. Bedingt durch den relativ hohen Untergrund sind die hier erhaltenen Grenzquerschnitte wesentlich größer. Die einzige Spontanspaltaktivität wurde in der Bk-Fm Fraktion beobachtet (19 Ereignisse in 60 d). Sie kann ^{254}Cf ($T_{1/2} = 60,5 \text{ d}$) zugeordnet werden; als Bildungsquerschnitt ergibt sich $6 \times 10^{-35} \text{ cm}^2$. Es muß gefolgert werden, daß ein superschwerer Kern von 150 d Halbwertszeit mit einem Bildungsquerschnitt von 10^{-33} cm^2 in unseren Experimenten zu gut meßbaren Spontanspaltungsaktivitäten hätte führen müssen.

⁺Auch GSI Darmstadt

¹G. N. Flerov, Proc. Nashville Conf., Vol. 2, p. 459 (1974)

²W. Brüchle et al., dieser Bericht S. 179

³M. Schädel et al., dieser Bericht S. 177

Suche nach superschweren Elementen in der Reaktion von ^{136}Xe mit ^{238}U

Experiment	Integr. Fluß (10^{17} Teilch.)	Chem. Methode	Elementfraktion	Meßzeit (Tage)	Anzahl Ereignisse	Querschnitt (10^{-36} cm^2) (obere Grenze)			
						$T_{1/2} = 1 \text{ d}$	10 d	150 d	1000 d
A	1.1	Lösungschemie	108-111	136	0 (a)	2.1	1.4	2.9	15
			112-116	136	0 (a)	2.1	1.4	2.9	15
B	0.9	Gaschemie	112-117	201	0 (a)	2.4	1.7	2.7	13
A + B	2.0	Ag-Folie	112-117	200	0 (a)	1.5	0.8	1.2	6
A + B	2.0	Gasfraktion	118	32.3	4 (b)	50	40	250	1500

(a): Spontanspaltereignisse

(b): > 4fache Koinzidenzen in Neutronenmultiplizitätszähler, Untergrund 7 Ereignisse/32 d.

Ein chemisches Trennverfahren zur Untersuchung von Aktinidenquerschnitten bei der Bestrahlung dicker U-Targets. ⁶

M. Schädel, W. Brüchle, B. Haefner, J. V. Kratz, W. Schorstein, W. Weber
GSI Darmstadt

N. Trautmann, R. Heimann
Institut für Kernchemie, Universität Mainz

Die Querschnitte für die Produktion von schweren Aktiniden-Isotopen in den Reaktionen von ^{136}Xe - oder ^{238}U -Ionen mit Uran liegen teilweise um mehr als 8 Größenordnungen¹ unter denen anderer α -aktiver Strahler wie Ra, Ac und Th. Diese Elemente müssen deshalb von den Transplutoniumelementen mit hohen Dekontaminationsfaktoren vor der off-line Messung abgetrennt werden. Eine weitere Auftrennung der Aktinidenelemente untereinander ermöglicht die Identifizierung individueller Aktinidenisotope durch α -Spektroskopie und die Bestimmung ihrer Bildungsquerschnitte.

Ein zur Aufarbeitung von Uran-Targets entwickeltes Trennverfahren^{2,3} wurde so modifiziert, daß die Produktverteilung von $Z = 89-101$ gemessen werden kann. Das durch Aufsprengen einer Uranfolie (500 mg/cm^2) auf Kupfer hergestellte dicke Target wird nach Bestrahlungsende mit einer Glasapparatur verbunden. Eine die maximale Reichweite der Reaktionsprodukte übersteigende U-Schicht wird mit HNO_3 abgelöst. Zur Bestimmung der chemischen Ausbeute sind der Säure bekannte Mengen radioaktiver Indikatoren beigemischt. Die Auftrennung erfolgt auf vier chromatographischen Säulen, wobei die Säulen I, II und IV des Trennschemas (s. Abb.) nach dem Prinzip der Hochdruckflüssigkeitschromatographie betrieben werden. In diesem Fall wurde mit Drucken bis zu 30 bar und Elutionsgeschwindigkeiten bis zu 2 ml/min gearbeitet. Zwischen den einzelnen Trennschritten wird das Volumen der einzelnen Eluate mit einem dafür entwickelten schnellen Rotationsverdampfer (5 ml/min) eingengt. Von der ersten Kationenaustauschersäule, SI, werden 5 Fraktionen eluiert. Das in der ersten Fraktion abgetrennte Pa wird durch eine Extraktion mit Diisobutylcarbinol gereinigt.⁴ Die U-, Ac- und Th-Fraktionen können direkt zur Messung präpariert werden. Auf der zweiten Kationenaustauschersäule, SII, werden durch Elution mit α -Hydroxyisobuttersäure (α -HIB) die Transplutoniumelemente (TPE) und Pu von Ra und dem schon sehr stark abgereicherten Ac abgetrennt. Das oxydierte Pu wird nun an einem Anionenaustauscher, SIII, aus stark salzsaure Lösung festgehalten und erst nach dem Durchlaufen der TPE durch Reduktion mit HI eluiert. Die Auftrennung der TPE erfolgt auf der Säule IV durch Flüssig-Flüssig-Extraktionschromatographie im System Di-(2-äthylhexyl)-orthophosphorsäure mit HNO_3 als Elutionsmittel. Die chemische Ausbeute der TPE wird durch geeignete Elemente der Seltenen Erden bestimmt,

die sich in diesem Trennungsgang chemisch gleich verhalten. Die Pa- und U-Fraktion wird durch eine Hydroxidfällung präpariert und γ -spektroskopisch gemessen, während die auf α -Zerfall und Spontanspaltung zu untersuchenden anderen Fraktionen durch Elektrodeposition auf Ta- oder Al-Ronden aus wässrigen oder organischen Medien hergestellt wurden.⁵ Die gesamte Trennung wird in ca. 3.5 h durchgeführt.

¹M. Schädel et al., dieser Bericht S. 53

²J. V. Kratz, J. O. Liljenzin und G. T. Seaborg, Inorg. Nucl. Chem. Letters 10, 951 (1974)

³M. Schädel et. al., GSI-J-1-77, S. 143

⁴N. Trautmann, R. Denig und G. Herrmann, Radiochimica Acta 11, 168 (1969)

⁵M. Weber, N. Trautmann und H. Menke, Jahresbericht 1975 des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz, S. 125

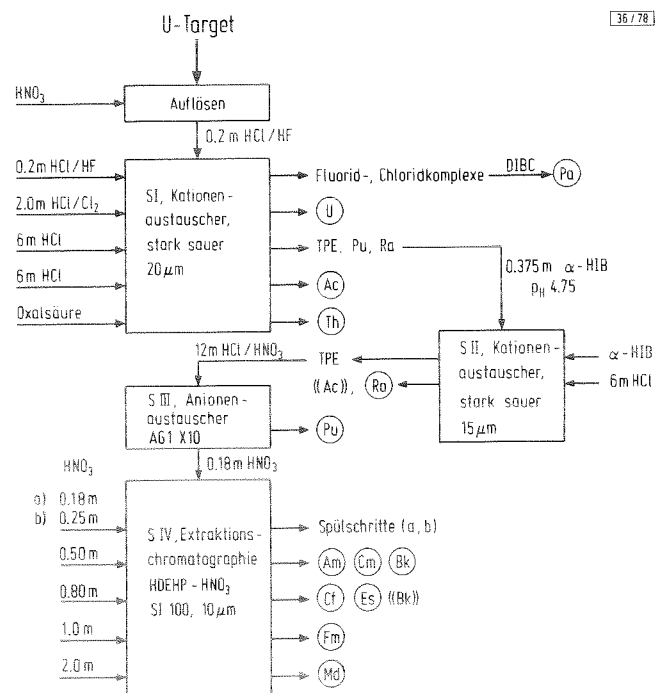


Abb.: Schema für ein chemisches Trennverfahren zur Untersuchung von Aktinidenquerschnitten bei der Bestrahlung dicker U-Targets.

Zwei chemische Trennmethoden für Superschwere Elemente ⁶

W. Brüchle, H. Gäggeler, H. Gäggeler-Koch, B. Haefner, J. V. Kratz, M. Schädel, W. Schorstein, E. Schimpf
 GSI Darmstadt

N. Trautmann, R. Heimann, G. Tittel, M. Weber, M. Zendei
 Institut für Kernchemie der Universität Mainz

1. Einleitung

Eine Abtrennung superschwerer Elemente (SHE) aus bestrahlten Targets stellt den Chemiker vor das Problem, wenige Atome eines unbekanntes Elementes aus einer Makromenge (Größenordnung 10^{20} Atome) zu isolieren. Zur Erfüllung dieser extremen analytischen Anforderungen sind chromatographische Verfahren geeignet. Wir arbeiten eine Abtrennung der SHE in der Gasphase (Thermochromatographie) und ein naßchemisches Verfahren (Ionenaustausch) aus.

2. Gaschemische Methode

Relativistische Hartree-Fock-Slater Berechnungen und auch Abschätzungen thermodynamischer Größen innerhalb der Gruppen des Periodensystems führen zu der Aussage, daß die superschweren Elemente (SHE) 112-118 leichtflüchtig sind.¹ Für $H_{298}^0(g)$ kann für die oben erwähnte Elementgruppe eine obere Grenze von 35 kcal/Mol abgeschätzt werden.² Dies entspricht etwa der Flüchtigkeit von Po. Diese SHE-Gruppe wird deshalb im elementaren Zustand in einer Quarzapparatur unter reduzierenden Bedingungen (H_2 -Trärgas) verflüchtigt, wie von B. Eichler vorgeschlagen³ und bei der Suche superschwerer Elemente bei Bestrahlungen von $^{246/248}Cm + ^{48}Ca$ in Dubna angewendet.⁴ Dadurch können Elemente mit $H_{298}^0(g) \leq 40$ kcal/Mol innerhalb einer Stunde mit Ausbeuten von $\geq 85\%$ aus dicken Urantargets verflüchtigt werden³, wobei eine Dekontamination von den Aktiniden von $\geq 10^9$ erreicht wird.⁴ Bei den hier durchgeführten Aufarbeitungen werden die Targets (500 mg/cm² U auf Cu) zuerst bei ca. 900° C 1 Stunde ausgeheizt. Dabei reagiert das Uran zu pulverförmigem Urannitrid. Aus dieser feinverteilten Matrix wird anschließend bei 1000±50° C in einem Quarzrohr eine Verflüchtigung im H_2 -Strom (ca. 50 ml/min) durchgeführt. Zum Abscheiden der flüchtigen Elemente wird am Ende des Ofens durch eine direkte H_2O -Kühlung ein möglichst steiler Temperaturgradient erzeugt. Die Innenseite des Quarzrohres wird an dieser Stelle mit 1 µm Ni-Folie ausgekleidet, auf der die verflüchtigten Produkte abgeschieden werden. Die Abscheidungszone überstreicht den Temperaturbereich von 800 bis 25° C. Die nicht abgeschiedenen gasförmigen Produkte werden in einer anschließenden Falle, die mit flüssigem Stickstoff gekühlt wird, kondensiert. Der Zeitaufwand für die gesamte Aufarbeitung beträgt 2 bis 3 Stunden. Die Messung der Präparate erfolgt mit 2 Sperrschichtzählern in 4π-Geometrie auf α- sowie auf Spaltaktivität. Dabei werden α-Energien und Spaltpulse

im Bereich 2-150 MeV gemessen. Gleichzeitig können koinzidente Ereignisse erfaßt werden. Die Gasfraktion wird in einem Neutronenmultiplizitätszähler gemessen.

3. Naßchemische Methode

Der Trennungsgang der naßchemischen Aufarbeitung der bestrahlten U-Targets folgt den Voraussagen der chemischen Eigenschaften der Elemente mit $Z = 108-116$ in wässrigen Lösungen, die starke Bromidkomplexe bilden und als Sulfidkomplexe gut extrahierbar sein sollten.^{5,6} Das bestrahlte Target wird mit einer geschlossenen Glasapparatur verbunden, in der eine die maximale Reichweite der Reaktionsprodukte übersteigende U-Schicht mit einer HBr/H_2O_2 -Mischung abgelöst wird. Freiwerdende flüchtige Anteile (z.B. Eka-Radon) werden mit einem He-Gasstrom durch eine Waschlösung geleitet und an Aktivkohle ausgefrenen ($N_2 - liq.$), die auf n-Multiplizitäten gemessen wird. Die Lösung mit den Reaktionsprodukten wird in die Waschlösung abdestilliert und der Rückstand in 0.1 m HBr auf einen Kationenaustauscher gegeben. Von diesem wird mit 0.1 m und 0.65 m HBr eluiert.⁵ Die Eluate und die Waschlösung werden mit Diäthylidithiophosphorsäure (DTP) in Cyclohexan extrahiert⁶, wobei die Elemente mit $Z = 111-116$ in die organische Phase gelangen, während die mit $Z = 108-110$ in der wässrigen Phase verbleiben. Beide Phasen werden auf einer dünnen Folie eingedampft. Diese dünnen Präparate (< 0.3 mg/cm²) werden wie oben beschrieben gemessen. Der Dekontaminationsfaktor gegenüber Aktiniden ist $\geq 10^9$ und der Zeitbedarf der Trennung beträgt 2-3 h.

¹K.S. Pitzer, J. Chem. Phys., **63**, 1032 (1975)

²B. Eichler, Kernenergie, **10**, 307 (1976)

³B. Eichler, J. Inorg. Nucl. Chem. **35**, 4001 (1973)

⁴Yu. Ts. Oganessian et. al., Nucl. Phys., **A294**, 213 (1978)

⁵J. V. Kratz, J. O. Liljenzin, G. T. Seaborg, Inorg. Nucl. Chem. Letters **10**, 951 (1974)

⁶W. Brüchle et. al., Transplutonium Elements, S. 29, North-Holland, 1976

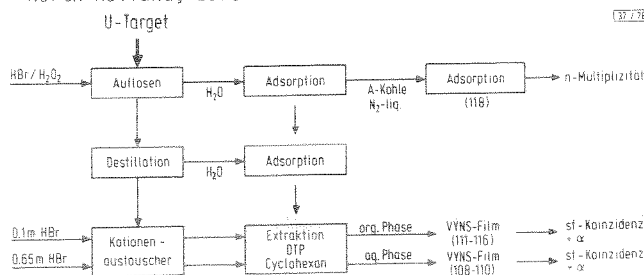


Abb. Trennschema der naßchemischen Aufarbeitung

Kontinuierliche Abtrennung von Kernreaktionsprodukten durch chemische Reaktionen im Gas-Jet ⁶

M. Zendel, E. Stender, N. Trautmann
Institut für Kernchemie, Universität Mainz

Zur chemischen Abtrennung von Nukliden mit Halbwertszeiten von Sekunden oder kürzer aus komplexen Reaktionsproduktgemischen bieten sich kontinuierliche Verfahren in der Gasphase an. Bisher wurde in solchen Fällen meistens ein Gas-Jet als Transportsystem zwischen Target und Chemieposition eingesetzt, wo durch Zugabe von reaktiven Gasen flüchtige Produkte erzeugt und anschließend thermochromatographisch aufgetrennt wurden¹. Alternativ hierzu sollte die Erzeugung flüchtiger Spezies durch chemische Reaktionen im Gas-Jet selbst möglich sein.

Diese Alternative wurde an Spaltproduktgemischen mit einem Äthylen-Jet untersucht. Beim Aufheizen des Jet-Gases auf $\sim 860^{\circ}\text{C}$ bilden sich flüchtige metallorganische Verbindungen des Selen und Tellurs, die auf diese Weise selektiv abgetrennt werden können. Abb. 1 zeigt schematisch den Aufbau zur kontinuierlichen Abtrennung

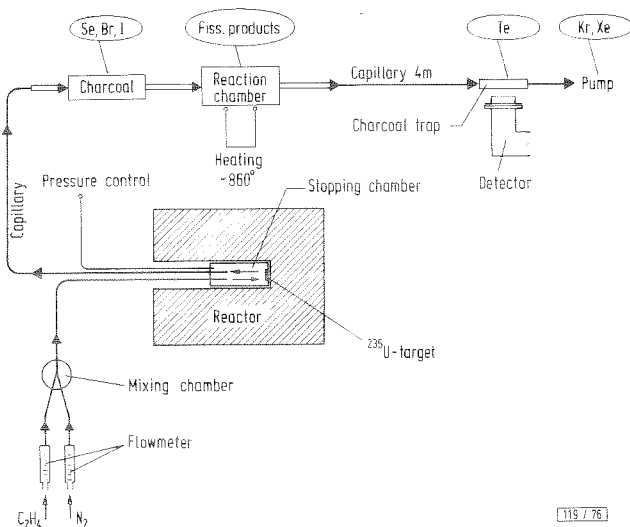


Abb. 1: Anordnung zur kontinuierlichen Abtrennung kurzlebiger Tellurnuklide aus Spaltproduktgemischen

des Tellurs. Mit einem Äthylen-Stickstoff-Jet (1.2 l/min; 1500 Torr) werden die bei der Spaltung von ^{235}U mit thermischen Neutronen erzeugten Reaktionsprodukte durch eine Kapillare ($\varnothing = 1\text{ mm}$; Länge 25 m) in eine mit Aktivkohle (Körnung 1.5 mm) gefüllte, 10 cm lange Säule transportiert. In dieser Falle werden Selen und die Halogene zu über 95 % festgehalten, während die Cluster mit den anhaftenden Spaltprodukten zusammen mit den Edelgasen zu über 90 % durchgehen. In einer Quarzspirale, die auf 860°C aufgeheizt ist, werden die

Äthylencluster zerstört (dies erfolgt bereits bei 500°C) und das Äthylen gecrackt. Dabei setzt sich das Spalttellur zu flüchtigen tellurorganischen Verbindungen um, die mit den Edelgasen über eine Kapillare zu einer weiteren Kohlefalle in einer abgeschirmten Meßposition transportiert und dort vollständig adsorbiert werden. Zum schnellen Transport der flüchtigen Tellurverbindungen und zum beschleunigten Entfernen der Edelgase aus der Kohlefalle wird hinter der Meßposition mit einer Pumpe abgesaugt ($12\text{ m}^3/\text{h}$). Die übrigen Spaltprodukte verbleiben unter den beschriebenen Bedingungen im Reaktionsgefäß.

Die Anordnung zur Abtrennung des Selen ist derjenigen für Tellur sehr ähnlich. Anstelle der ersten Kohlefalle werden zwei Blaubandfilter eingesetzt, welche die Cluster zusammen mit dem anhaftenden Spaltprodukten einschließlich Tellur zurückhalten, während Selen, Halogene und Edelgase, für deren Transport keine Cluster notwendig sind, die Filter passieren. Die weiteren Trennschritte sind analog der Tellurabtrennung.

Die selektive Abtrennung des Selen und Tellurs vom Rest der Spaltprodukte hängt sehr stark von der Zersetzungstemperatur in der Quarzspirale ab.

Durch Pulsbestrahlungen konnte der Zeitbedarf für den Transport der Aktivitäten vom Ort des Entstehens bis zur Meßposition, einschließlich Trennzeit, ermittelt werden. Für Tellurnuklide beträgt die Zeit bis zum Erreichen von 50 % der Gesamtaktivität 5-6 s.

Diese Methoden ermöglichten kernspektroskopische Untersuchungen an neutronenreichen Nukliden beider Elemente bis zum ^{88}Se ($T_{1/2} = 1.6\text{ s}$) und ^{137}Te ($T_{1/2} = 3.6\text{ s}$). Das Te-Trennverfahren soll zum Studium neutronenarmer Te-Nuklide nach Schwerionenreaktionen eingesetzt werden.

¹R.J. Silva, N. Trautmann, M. Zendel, P.F. Dittner, E. Stender und H. Ahrens, *Nucl. Instr. Meth.* **147**, 371 (1978)

Thermochromatographische Untersuchung des Poloniums in Kupferkolonnen

B. Eichler

Zentralinstitut für Kernforschung, Rossendorf, DDR

H. Gäggeler-Koch, H. Gäggeler

GSI Darmstadt

1. Einleitung

Thermochromatographische Methoden, d.h. die Verflüchtigung und Wiederabscheidung chemischer Elemente in einem Temperaturgradienten, sind zur chemischen Isolierung kurzlebiger Isotope geeignet. Mit der Untersuchung des Verhaltens von Polonium in Kupferkolonnen können Vorstellungen gewonnen werden über den Zusammenhang zwischen der Meßgröße Abscheidungstemperatur, den Parametern Gasdurchsatz und Versuchszeit, sowie den thermodynamischen Größen, die das Adsorptionsgleichgewicht beschreiben (ΔH_a , ΔS_a). Parallel dazu kann das in Ref. 1 beschriebene Modell des Stofftransports im Temperaturgradientrohr geprüft werden. Auf der Grundlage dieses Modells sollte es möglich sein, in Abhängigkeit von den jeweiligen experimentellen Parametern, die Abscheidungstemperaturen unter Annahme extrapolierte Adsorptionenthalpien für superschwere Elemente (112-118) abzuschätzen.

2. Experimentelles

^{210}Po Tracer (ca. 10^8 Atome) wurde in einem mit Cu-Folie ausgelegten Quarzrohr ($\phi = 1,8$ mm), das sich in einem Ofen mit linearem negativen Temperaturgradienten ($a = -24^\circ/\text{cm}$) befand, ausgeheizt. Die Start- resp. Endtemperaturen betragen 950°C resp. 25°C .

In einer ersten Versuchsreihe (7 Experimente) wurde die Strömungsgeschwindigkeit des Trägergases (He) im Bereich 1,24 bis 2000 NTP ml/min bei festgehaltener Ausheizzeit t_r von 30 min variiert. Bei einem Gasstrom $v_0 = 13,5$ NTP ml/min wurde anschließend in einer zweiten Versuchsreihe (4 Experimente) die Ausheizzeit t_r im Bereich 1,7 bis 615 min verändert. Nach Versuchsabschluß wurden die Kupferfolien in 1 cm Abschnitte zerlegt und die ^{210}Po Verteilung mittels α -Messung bestimmt.

3. Diskussion der Ergebnisse

In Abb. 1 sind die experimentellen Ergebnisse in Form der Funktion

$$k = - \frac{t_r v_0 a}{s_1 T_0 \exp\left(\frac{\Delta S_a}{R}\right)} \quad (1)$$

gegen die Abscheidungstemperatur T_A aufgetragen. Dabei bedeuten:

t_r = Versuchszeit in min

s_1 = geometrische Oberfläche in einem Kolonnenabschnitt der Länge 1 cm

$\Delta S_a = 40 \text{ cal Mol}^{-1} \text{ Grad}^{-1}$ (aus molekularkinetischen Daten berechnet²)

$T_0 = 298^\circ\text{K}$; a = Temperaturgradient ($-24^\circ/\text{cm}$)

v_0 = Gasdurchsatz (NTP ml/min); R = Gaskonstante

Gemäß Ref. 1 kann k ebenfalls berechnet werden mit

$$k = E_i^+ \left(- \frac{\Delta H_a}{RT_S} \right) - E_i^+ \left(- \frac{\Delta H_a}{RT_A} \right) \quad (2)$$

wobei T_S = Starttemperatur (1223°K)

und $E_i^+(x)$ = Integraleponentialfunktion von x bedeuten.

Die beste Übereinstimmung von Gleichung (2) mit den experimentellen Daten konnte bei Annahme einer Adsorptionenthalpie von $39 \pm 1 \text{ kcal/Mol}$ erzielt werden. Diese theoretische Funktion ist in Abb. 1 als ausgezogene Linie dargestellt. Der Fehlerbereich von $\pm 1 \text{ kcal/Mol}$ ist gestrichelt eingezeichnet. Es ist ersichtlich, daß die über einen breiten Bereich von v_0 und t_r gemessenen Daten gut mit Gleichung (2) beschrieben werden können.

¹B. Eichler, I. Zvara; Dubna Preprint P12-8943 (1975)

²B. Eichler, H. Gäggeler-Koch, H. Gäggeler; Veröffentlichung in Vorbereitung.

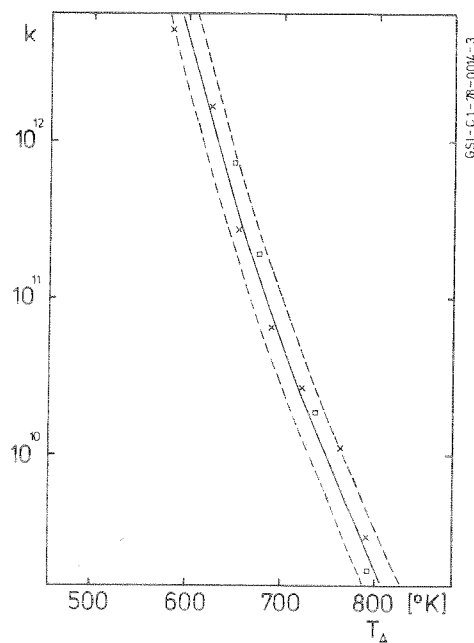


Abb. 1 Abscheidungstemperaturen von Po auf Cu bei verschiedenen k-Werten (s. Gl. 1)
 x : Gasdurchsatz variabel, Ausheizzeit fest
 □ : Gasdurchsatz fest; Ausheizzeit variabel
 Eingezeichnet ist ebenfalls der mit Gl. (2) erhaltene Verlauf unter Annahme von $\Delta H_a = 39 \pm 1 \text{ kcal/Mol}$.

Thermochromatographische Trennung von Kernreaktionsprodukten
bei kontinuierlicher Einspeisung mit einem Kaliumchloridjet

B. Eichler

Zentralinstitut für Kernforschung, Rossendorf, DDR

H. Gäggeler-Koch, H. Gäggeler
GSI Darmstadt

N. Trautmann, M. Zindel
Institut für Kernchemie, Universität Mainz

Zur Isolierung kurzlebiger Nuklide können kontinuierliche gaschemische Verfahren eingesetzt werden. Wird der chemische Trennschritt direkt am Targetort durchgeführt, so sind noch Halbwertszeiten von $\geq 0,1$ sec erfassbar. Eine solche Anordnung wurde von Zvara et. al.¹ bei den chemischen Arbeiten mit Element 104 und 105 gewählt. Häufig ist es aber aus meßtechnischen Gründen wünschenswert, zwischen Target und chemischer Trennapparatur ein schnelles kontinuierliches Transportsystem aufzubauen. Dazu eignen sich Jetsysteme, bei denen die zu transportierenden Produkte an Clustern absorbiert sind und in einem Trägergasstrom über große Distanzen transportiert werden können.

In dieser Arbeit wurde als Transportsystem ein KCl Jet mit N₂-Trägergas für eine kontinuierliche gaschemische Trennung verwendet. Dazu wurde der Jet in ein Quarzrohr ($\phi = 6$ mm, gefüllt mit Quarzkugeln und an der Einleitungsseite mit einem Quarzwattepfropfen versehen) geleitet, das sich in einem Ofen mit linearem negativen Temperaturgradienten ($-24^\circ/\text{cm}$) befand. Die Starttemperatur betrug 950°C . Diese Anordnung wurde am Mainzer TRIGA-Reaktor aufgebaut, um die Kopplung Jet und Gaschemie mit Spaltprodukten zu testen.²

In einer ersten Versuchsreihe wurde der KCl/N₂ Jet in das Trennrohr eingeleitet. Nach einer Bestrahlungszeit von 15 min wurde noch 5 min mit reinem N₂ gespült. Die gemessene Aktivitätsverteilung entlang des Rohres ist in Abb. 1 dargestellt. Die unter den Zersetzungsbedingungen der KCl-Cluster nichtflüchtigen Produkte kumulieren sich im Bereich der höchsten Temperatur (Quarzwattepfropfen, ca. 44-48 cm). Das Fehlen von schwerflüchtigen Produkten in der Kohlefalle nach dem Gradientenrohr zeigt die vollständige Zersetzung der Cluster an. Das Abscheidungsverhalten der flüchtigen Produkte deutet auf einen Transport als Oxid bzw. als Element hin. Hinweise auf die Bildung flüchtiger Chloride beim Zerstören der KCl-Cluster konnten nicht beobachtet werden.

In einer zweiten Versuchsreihe wurde untersucht, ob bei 950°C durch Überleiten von CCl₄ Spaltproduktchloride gebildet, kontinuierlich verflüchtigt und aufgetrennt werden können. Dazu wurde vor dem Gradientenrohr über ein T-Stück durch CCl₄ geleitetes N₂ zugeführt. Bestrahlungs- und Spülzeit waren analog der ersten Versuchs-

reihe. In Abb. 2 ist die gemessene Spaltproduktverteilung dargestellt. Die Anzahl der im Gradientenrohr abgeschiedenen Produkte vergrößert sich als Folge der Chlorierung. In der Kohlefalle wurden weiterhin die Elemente I, Br, Se identifiziert.

Die Ergebnisse zeigen, daß durch Zusatz von reaktiven Gasen eine chemische Umsetzung der Produkte nach der Clusterzersetzung erfolgt.

¹I. Zvara et. al., Radiokhimiya, 14, 119 (1972) und I. Zvara et. al., Radiokhimiya, 18, 3, 371 (1976)

²R. J. Silva et. al., Nucl. Instr. and Meth. 147, 371 (1977).

Abb. 1

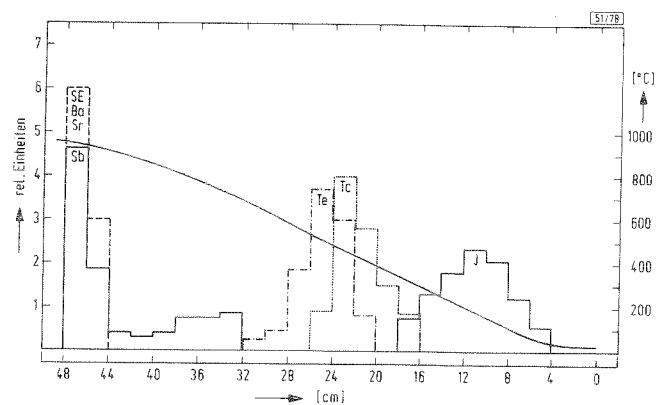


Abb. 2

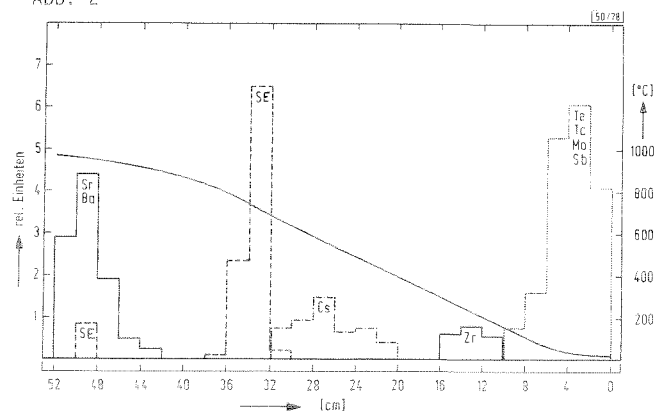


Abb. 1+2 Thermochromatographische Spaltproduktauf-trennung in einem Gradientenrohr bei Einspeisung mit

- 1) einem KCl/N₂-Jet
- 2) einem KCl/N₂-Jet + CCl₄/N₂