Zeitschrift: Helvetica Physica Acta
Band: 43 (1970)
Heft: 6-7

Artikel: Spontane Kernspaltung von 238U und 241Am
Autor: Galliker, D. / Hugentobler, E. / Hahn, B.
DOI: https://doi.org/10.5169/seals-114183

Nutzungsbedingungen
Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Mehr erfahren

Conditions d'utilisation
L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. En savoir plus

Terms of use
The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. Find out more

Download PDF: 12.07.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Spontane Kernspaltung von ^{238}U und ^{241}Am

von **D. Galliker** und **E. Hugentobler**
Universität Freiburg i. Ue.

und **B. Hahn**
Universität Bern

(3. IV. 70)

Abstract. With the spinner method, which is based on the principle of cavitation of liquids induced by energy deposition by particles, we have measured the spontaneous fission half lives of ^{238}U and ^{241}Am. We found $(8.19 \pm 0.06)\ 10^{15}$ years for ^{238}U and $(9.0 \pm 0.4)\ 10^{13}$ years for ^{241}Am. In order to search for possible systematic errors, the measurements were done under different experimental conditions.

Einleitung

In den meisten Experimenten zur Bestimmung der Zerfallskonstanten für spontane Spaltung von Atomkernen ermittelt man die Häufigkeit der einzelnen Spaltprodukte durch radiochemische und massenspektrometrische Methoden, oder man zählt die Spaltfragmente direkt mit Detektoren. In unserem Experiment werden die Spaltereignisse in einer Rotationskammer gezählt [1–3]. Die Rotationskammer beruht auf dem Prinzip der Flüssigkeitskavitation, welche durch die Energieabgabe der Spaltfragmente ausgelöst wird. Die Vorteile der Rotationskammer für solche Untersuchungen sind vor allem:

- die direkte Messung der Anzahl Kernspaltungen mit 100% Ansprechwahrscheinlichkeit,
- der sehr hohe Diskriminierungsgrad gegenüber Alphazerfällen,
- praktische Abwesenheit des «pile-up»-Effektes,
- keine Schichtdicke-Korrektur, da die Quelle in der Kammerflüssigkeit gelöst wird. Die Lösung selber wirkt im ganzen Volumen als Detektor.

Diese Eigenschaften ermöglichen das Experimentieren mit grossen Mengen spaltbaren Materials, was genaue Messungen von Halbwertszeiten der spontanen Kernspaltung bei relativ kurzer Messdauer erlaubt. Es wurden bisher Gefässe bis zu 2 Liter Inhalt verwendet.

Die genaue Kenntnis der Zerfallskonstanten der spontanen Kernspaltung von ^{238}U ist wegen ihrer chronologischen Bedeutung sehr erwünscht [4–8]. Eine neuere Methode der Altersbestimmung ist die «Solid-State Track Recorder»-Methode (SSTR), wobei die Spuren der Spaltfragmente der spontanen Kernspaltung von ^{238}U sichtbar

gemacht und ausgezählt werden. Die Methode wurde vor allem von Fleischer, Price und Walker [4, 5] zu einer einfachen Nachweismethode entwickelt. Da Uran in vielen festen Körpern vorkommt, hat die Methode eine grosse Anwendbarkeit auf viele Mineralien. Eine Altersbestimmung benötigt die Kenntnis der Anzahl Spuren der Spaltprodukte, die in der Probe enthaltene Uranmenge (^{238}U) und die Zerfallskonstante der spontanen Spaltung von ^{238}U.

Die grossen Differenzen zwischen den neuesten Messungen der Halbwertszeit der Spontanspaltung für ^{238}U von

Ishimori et al. [9]	$T_{1/2} = (7{,}191 \pm 0{,}158)\ 10^{15}$ Jahre,
Spadavecchia et al. [2]	$T_{1/2} = (8{,}23 \pm 0{,}10)\ 10^{15}$ Jahre,
Roberts et al. [10]	$T_{1/2} = (9{,}86 \pm 0{,}15)\ 10^{15}$ Jahre,

hat uns veranlasst, die Messung mit der Rotationskammer [2] mit grösserer statistischer Genauigkeit und unter verschiedenen experimentellen Bedingungen nochmals durchzuführen.

Die spontane Kernspaltung von ^{241}Am wurde schon 1952 von Segrè [11] mit einer Ionisationskammer und vor einigen Jahren von Mikheev et al. [12] und Druin et al. [13] mit Xenon-Gasszintillationszählern gemessen. Wegen der grossen Alphaaktivität bei einer langen Halbwertszeit für die spontane Kernspaltung (ungefähr 10^{11} Alphazerfälle pro spontanes Kernspaltereignis) ist wegen der Überlagerung von elektrischen Impulsen (pile-up) eine Messung mit den genannten Methoden nur mit relativ schwachen Quellen möglich. Da der «pile-up»-Effekt für die Rotationskammer praktisch nicht existiert, ist letztere für die Messung ganz besonders geeignet. Unsere Messungen wurden mit ungefähr 10^9 Alphazerfällen pro Sekunde durchgeführt.

Experimentelle Methode

Die Messmethode und die Anwendungsmöglichkeiten der Rotationskammer wurden in früheren Arbeiten [1–3] beschrieben. Bei der Rotationskammer wird durch Zentrifugalkräfte ein Zug auf die Flüssigkeit und bei einem Kernspaltereignis eine Kavität erzeugt. Beim Erreichen einer gewissen Drehzahl (minimaler negativer Druck) wird die Flüssigkeit für einen bestimmten Prozess (z.B. Kernspaltung) «strahlungsempfindlich». Beim Erhöhen der Frequenz wird schnell ein Plateau der Zählrate (mittlere reziproke Wartezeit) erreicht. Der negative hydrostatische Druck p in der Rotationsachse beträgt:

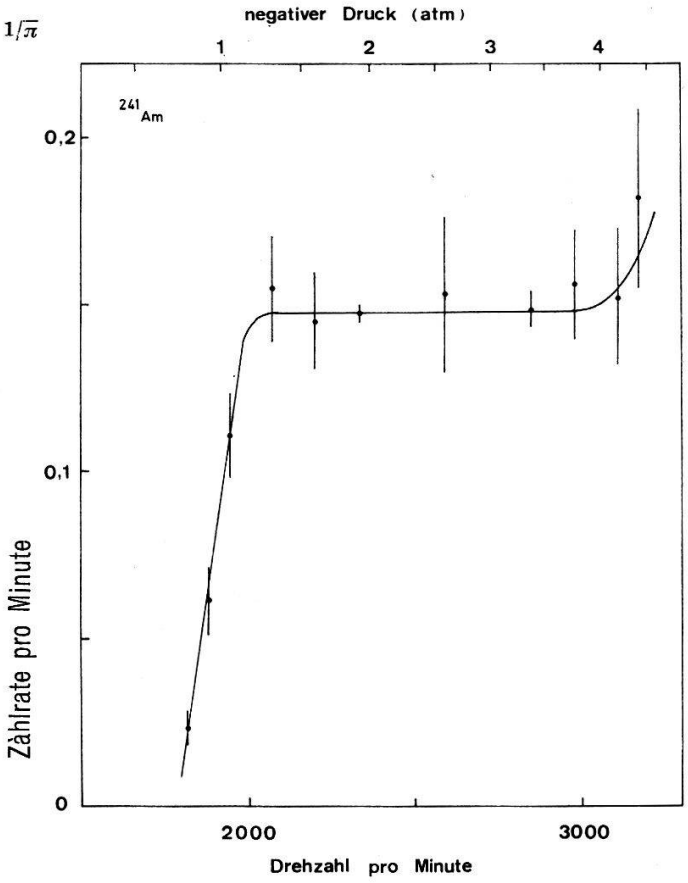
$$p = 2\,\pi^2\,\varrho\,\nu^2\,R^2 - p_b \tag{1}$$

im Abstand r von der Rotationsachse:

$$p = 2\,\pi^2\,\varrho\,\nu^2\,(R^2 - r^2) - p_b\,, \tag{2}$$

wobei:
ϱ = Flüssigkeitsdichte,
ν = Drehzahl,
R = Flüssigkeitsarmlänge,
p_b = Druck auf den Flüssigkeitsspiegel.

ν_0 sei die Drehzahl, bei der die Flüssigkeit für Kernspaltungen empfindlich wird (halbe Höhe des Plateaus). Den Wert für ν_0 erhält man durch Messen des Einsatzes der Kern-



Figur 1
Typische Einsatzkurve der Kernspaltung von ^{241}Am. Zählrate (pro Minute) als Funktion der Drehzahl.

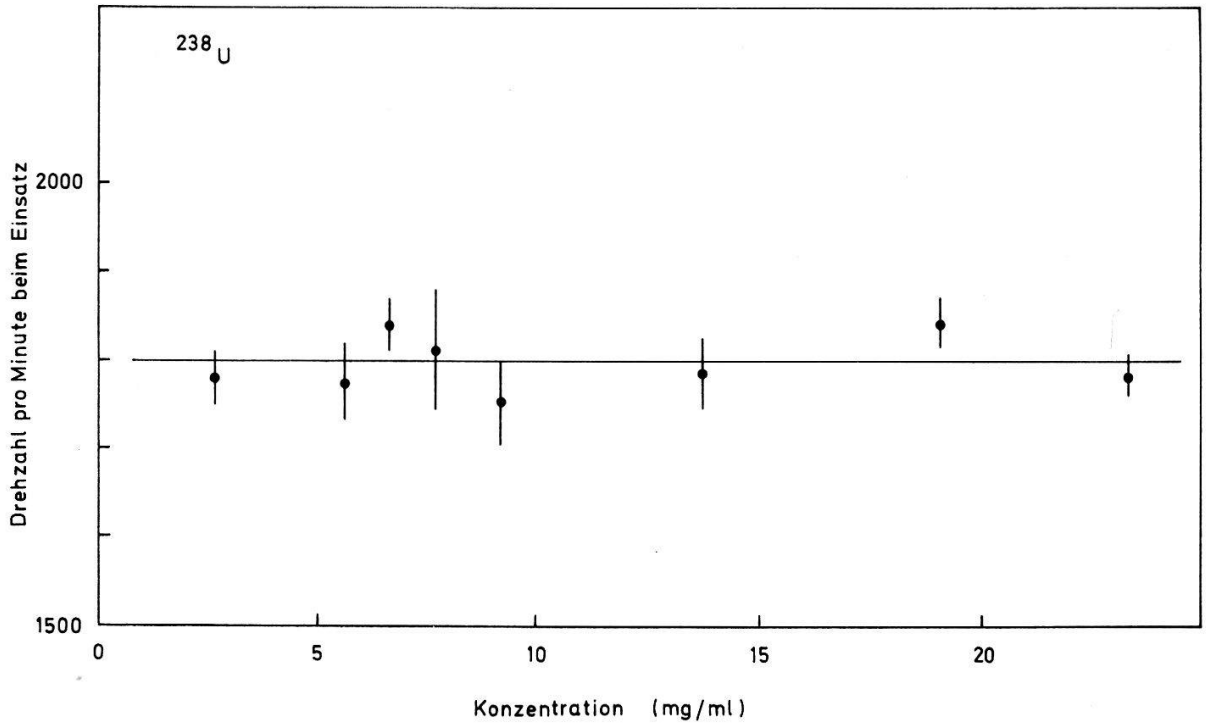
spaltung. Damit lässt sich für eine bestimmte Drehzahl ν der Radius r bestimmen, innerhalb welchem die Flüssigkeit in der Kammer für Kernspaltungen noch empfindlich ist (empfindliches Volumen bis zum Radius r_e). Die Empfindlichkeit reicht je nach Drehzahl ν in die Arme der Rotationskammer hinein.

$$r_e = R\,(1 - z^2)^{1/2} \text{ mit } z = \frac{\nu_0}{\nu}. \tag{3}$$

Um das empfindliche Volumen und damit die genaue Menge des untersuchten Urans bzw. Americiums bestimmen zu können, müssen wir die Drehzahl ν_0 des Einsatzes der Kernspaltung messen. In Figur 1 ist eine solche Einsatzkurve einer Einzelmessung dargestellt. Wir haben solche Einsatzkurven für Urankonzentrationen zwischen 2 mg/ml und 25 mg/ml gemessen. Es wurde keine Abhängigkeit der Drehzahl ν_0 von der Konzentration festgestellt (Fig. 2). Wie bereits früher mitgeteilt [2], hat die Temperaturschwankung in der Kammer (in unserem Fall $\pm$ 0,2 °C) während der Messung nur einen unmerklichen Einfluss auf die Einsatzdrehzahl ν_0 zur Folge.

Wenn wir die Menge der spaltbaren Substanz m, die in der Kammerflüssigkeit gelöst wurde, kennen, lässt sich aus der Messung der mittleren Wartezeit $\bar{\tau}$ bis zum Eintreffen der Ereignisse die Zerfallskonstante λ' pro Gramm und Sekunde bestimmen.

$$\lambda' = \frac{1}{\bar{\tau}\, m}. \tag{4}$$



Figur 2
Einsatz der Kernspaltung als Funktion der Konzentration des spaltbaren Materials (Uran) in der Kammer.

Daraus die Halbwertszeit $T_{1/2}$ der spontanen Kernspaltung in Jahren:

$$T_{1/2} = \frac{1{,}32 \cdot 10^{16}}{A\,\lambda'}\,.$$

A ist die Massenzahl des untersuchten Atomkerns.

Die verwendeten Quellen
Uran-238

Es wurden Quellen mit natürlichem Uran als Uranylnitrat ($UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$) und mit abgereichertem Uran als Urandioxyd (UO_2) verwendet. Die Mengen in Gramm der einzelnen Quellen ersieht man aus Tabelle 1. Für die Messungen wurde das Uran als Nitrat in Äthylalkohol gelöst in die Kammer gegeben.

Americium-241

Die Quellen wurden durch Beschiessen von ^{239}Pu mit Reaktorneutronen hergestellt (The Radiochemical Centre, Amersham).

$$^{239}\mathrm{Pu}(n,\gamma)\ ^{240}\mathrm{Pu}(n,\gamma)\ ^{241}\mathrm{Pu} \xrightarrow[13{,}2y]{\beta} {}^{241}\mathrm{Am}\,. \tag{6}$$

Es wurde zuerst eine Americium-Quelle mit ungefähr 2000 ppm Plutonium-Verunreinigung zu Testzwecken verwendet. Hierauf wurde die Quelle am Eidgenössischen Institut für Reaktorforschung (EIR) gereinigt. Für die Reinigung wurde die Am-Lösung eingedampft und in 0,3 M α-Hydroxyisobuttersäure gelöst. Die resultierende Lösung wird chromatografisch auf einer Dowex 50 × 8 (200–400 mesh) Kationenaustauschersäule, von 4 mm innerem Durchmesser und 120 mm Länge, gereinigt. Das

Auswaschen wird mit 0,3 M α-Hydroxyisobuttersäure und 0,5 N Salpetersäure und dann mit steigender Konzentration der Salpetersäure bis 2 N durchgeführt. Die Alphaaktivität wird mit einem Plastik-Szintillations-Durchflusszähler verfolgt, um das Americium von anderen Transuranen zu trennen. Bei diesem Vorgehen gehen, um eine sichere Trennung zu gewährleisten, ungefähr 10% des ^{241}Am verloren. Die Lösung wird dann eingedampft und in Äthylalkohol gelöst. Der Plutonium-Gehalt nach der Reinigung wird auf $\leqslant$ 20 ppm geschätzt.

Eine dritte Quelle wurde durch die Herstellerfirma (The Radiochemical Centre, Amersham) speziell gereinigt und enthielt nach deren Angaben weniger als 50 ppm Plutonium. Die Daten sind in Tabelle 2 dargestellt.

Tabelle 1
Uran-Messung. Verwendete Quellen und Isotopenzusammensetzung.

Quelle	Menge ^{238}U in g	Art der Quelle
1	2,48	natürliches Uran
2	0,87	natürliches Uran
3	1,96	abgereichertes Uran
4	1,41	abgereichertes Uran

Isotopen-Zusammensetzung

natürliches Uran:	^{234}U	0,005 Gew.-%
	^{235}U	0,711 Gew.-%
	^{238}U	99,283 Gew.-%
abgereichertes Uran:	^{235}U	0,217 Gew.-%
	^{236}U	< 0,006 Gew.-%
	^{238}U	99,777 Gew.-%

Die Isotopenanalyse und das abgereicherte Uran wurden freundlicherweise durch das Eidg. Institut für Reaktorforschung in Würenlingen durchgeführt und zur Verfügung gestellt.

Tabelle 2
Americium-Messung. Verwendete Quellen.

Quelle	Menge ^{241}Am in mCi	Plutonium-Gehalt
1	16,1	< 2000 ppm
2	13,9	< 20 ppm
3	11,4	< 50 ppm

Messungen und Messfehler

Der Fehler der zu bestimmenden Zerfallskonstante λ' setzt sich aus dem statistischen Fehler der Anzahl Messungen und aus dem Messfehler der Zeit und der effektiv verwendeten Substanzmenge und eventuell systematischen Fehlern (z.B. anderen spontan zerfallenden Verunreinigungen) zusammen.

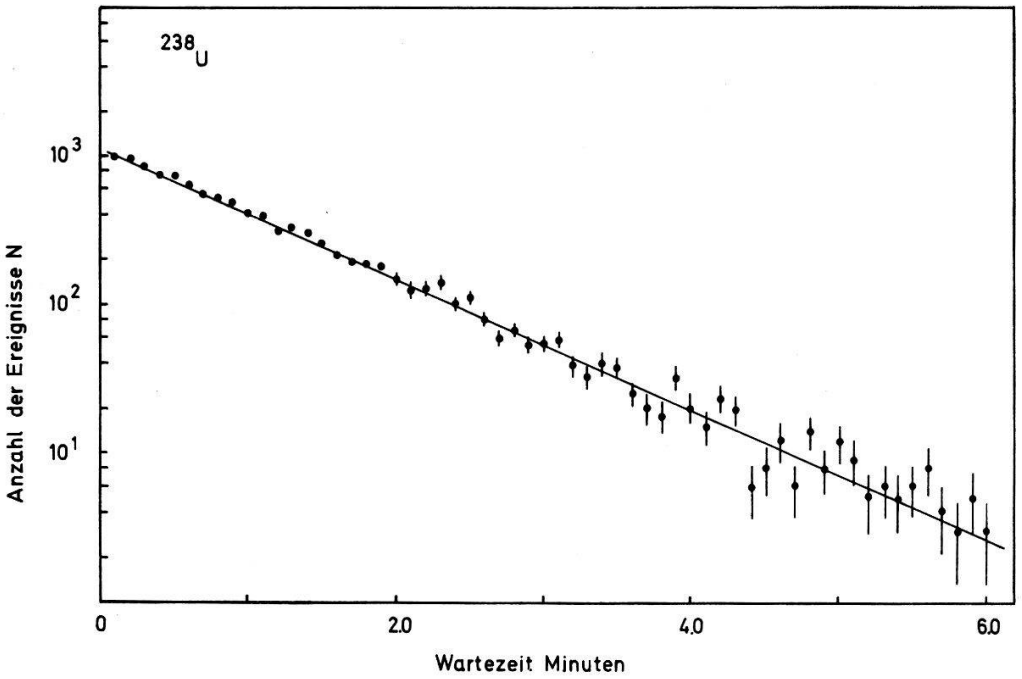
Zeitmessung

Die Uhr wird, wenn die gewünschte Drehzahl erreicht ist, gestartet. Der Beginn der Zeitmessung kann nach Erreichen der gewünschten Drehzahl irgendwann erfolgen.

Beim Eintreffen des Ereignisses wird die Uhr gestoppt und die Zeit herausgedruckt. Die Rotationskammer wird zum Stillstand gebracht, die Blasen gehen nach oben und nach einer Pause von ungefähr einer Minute wird automatisch wieder gestartet. Die wahre mittlere Wartezeit und damit die wahre Zählrate wird aus der Steigung der logarithmischen Wartezeitverteilung bestimmt. Die Methode entspricht der «mean gap length»-Methode der Blasenkammer [17].

In Figur 3 ist die Wartezeitverteilung für eine Uranmessung aufgetragen. Der exponentielle Abfall entspricht statistisch unabhängigen Ereignissen.

Die Genauigkeit der Zeitmessung wird für mittlere Wartezeiten von einigen Minuten auf $< \pm 0{,}2\%$ geschätzt.



Figur 3
Wartezeitverteilung für eine ^{238}U-Messung. Die Klassenbreite beträgt 0,1 Minuten.

Menge des spaltbaren Materials m

Die Menge des zu messenden spaltbaren Materials m ergibt sich aus dem «strahlungsempfindlichen» Kammervolumen und der Gewichtskonzentration des spontan spaltenden Isotops in der Kammerflüssigkeit.

Der Fehler bei der Mengenbestimmung setzt sich zusammen aus den Fehlern in der Konzentration und in der Bestimmung des bei der Messung empfindlichen Volumens. Die Genauigkeit in der Volumenbestimmung hängt primär ab von der experimentellen Messung des empfindlichen Volumens und sekundär von der experimentellen Bestimmung des empfindlichen Radius' r_e, der endlichen Steilheit des Einsatzes der Kernspaltung, der Stabilität der Drehzahl und von der Temperaturkonstanz während der Messung. Die Drehzahlstabilität ist besser als $\pm 0{,}3\%$. Mit unserem Kühl-Heiz-System hatten wir eine Temperaturkonstanz von $\pm 0{,}2\,°C$. Die sekundären Fehler ergeben eine Änderung des empfindlichen Volumens von $< 0{,}1$ ml und können vernachlässigt werden.

Die Genauigkeit der Mengenbestimmung wird auf $\pm 0{,}2\%$ geschätzt.

Die Konzentration für ^{238}U wurde durch drei verschiedene Methoden bestimmt:
- Mikrogewichtsanalyse (Gravimetrie),
- Selektive Spektralphotometrie, [18]
- Abwägen der Substanz als Oxyd vor der Messung.

Die dritte Methode wurde für das Uranoxyd angewandt. Die gravimetrischen Untersuchungen wurden unabhängig voneinander in verschiedenen Laboratorien durchgeführt. Die gefundenen Resultate sind aus Tabelle 3 ersichtlich.

Tabelle 3
Uran. Konzentrationsbestimmung der Quellen mit verschiedenen Methoden.

Quelle	Methode	Anzahl Versuche	Mittelwert (mg/ml)	Konzentration (mg/ml)
1	Gravimetrie	2	19,43	
	Gravimetrie	2	19,36	19,30 ± 0,06
	Gravimetrie	3	19,16	
	Photometrie	6	19,25	
2	Gravimetrie	4	6,59	6,62 ± 0,03
	Gravimetrie	4	6,65	
3	Gravimetrie	2	15,60	15,70 ± 0,11
	Gravimetrie	4	15,81	
4	Wägen	3	10,95	10,88 ± 0,07
	Photometrie	6	10,81	

Die Genauigkeit einer Mengenbestimmung wird auf ± 0,5% geschätzt.

Die Konzentration des ^{241}Am wurde aus der Alphaaktivität ermittelt. Für die Bestimmung der Anzahl ^{241}Am-Atome wurden Proben der Americiumlösung auf Platinplättchen gebracht, getrocknet und geglüht. Die Proben wurden dann in einem kalibrierten, fensterlosen 2-π-Proportionalzähler gezählt. Die Kalibration des Zählers wurde mit einem isotopisch reinen ^{241}Am-Standard [(3,33 ± 0,03) 10^5 dpm] ausgeführt. Das Alphaspektrum der Proben zeigt keine anderen Energien als 5,477 MeV und 5,435 MeV vom ^{241}Am. Als Alphahalbwertszeit wurde 435 Jahre verwendet [14,15].

Der Fehler in der Bestimmung der Anzahl ^{241}Am-Atome wird auf ungefähr ± 3% geschätzt, ohne Berücksichtigung eines möglichen Fehles in der Halbwerbzeit des α-Zerfalles von ^{241}Am (435 a).

Untergrund

Bei der Messung der spontanen Kernspaltung können die folgend genannten Effekte einen unerwünschten Beitrag (Untergrund) zur gemessenen Zählrate geben.

1. (α, n, f)-Reaktion,
2. die kosmische Strahlung,
3. Verunreinigung von schweren, spaltenden Elementen.

1. *Die (α, n, f)-Reaktion*

Alphateilchen vom radioaktiven Zerfall des spaltbaren Materials in der Kammer erzeugen Neutronen, welche induzierte Kernspaltungen bewirken können. Aus der

Anzahl der in der Zeiteinheit erzeugten Neutronen und dem Wirkungsquerschnitt σ_{nf} der (n, f)-Reaktionen ergibt sich die Zählrate $Z_{\alpha nf}$ des vom Alphazerfall der Substanz herrührenden Untergrundes [2].

$$Z_{\alpha nf} = \lambda_\alpha W_n \bar{\sigma}_{nf} G^2 n_g \bar{l}/V \tag{7}$$

wobei:
λ_α = Alphazerfallskonstante in g^{-1} sec^{-1},
G = Masse der aktiven Substanz in der Kammer,
n_g = Anzahl der Atomkerne pro g Substanz,
V = Kammervolumen.

Die Wahrscheinlichkeit W_n der (α, n)-Reaktion ergibt sich nach [19] zu 10^{-7}.

Die mittlere zur Verfügung stehende Länge der Neutronenbahnen $\bar{l}$ innerhalb der Flüssigkeit beträgt nach einer Monte-Carlo-Rechnung 2,2 cm, wobei die spezielle Gefässform berücksichtigt wird.

2. *Induzierte Kernspaltungen durch kosmische Strahlung*

Die Zählrate Z_n der durch kosmische Neutronen induzierten Kernspaltungen ist:

$$Z_n = \int_{E_1}^{E_2} n \frac{dN}{dE} \sigma_{nf} dE \,. \tag{8}$$

Dabei bedeuten n und dN/dE die Anzahl Targetkerne pro g Substanz und den Neutronenfluss in cm^{-2} sec^{-1} MeV^{-1}. Der kosmische Neutronenfluss wurde von Hess et al. [20] in verschiedenen atmosphärischen Höhen gemessen.

$$Z_n \text{ (Uran)} = 3{,}3 \; 10^{-3} \; g^{-1} \; min^{-1} \,,$$

$$Z_n \text{ (Americium)} \sim 10^{-6} \; min^{-1} \; mg^{-1} \,.$$

Um einen Einfluss der kosmischen Neutronen auszuschliessen, mussten die Messungen mit U unter Fels (40 m) durchgeführt werden.

Kernspaltungen können durch Einfang von Myonen induziert werden [21]. Es wird hier die Annahme gemacht, dass im Uran und im Americium pro Kern gleich viele Myonen gestoppt werden wie im Blei. In 1 g Blei stoppen auf Meeresniveau $3{,}3 \cdot 10^{-4}$ der Myonen. Die Intensität der negativen Myonen auf Meereshöhe beträgt nach Rossi [22] 20,5 μ^-/cm^2h. Es werden also $7 \cdot 10^{-3}$ μ^-/cm^2hg eingefangen. Dieses Resultat wurde von Galbraith [23] für Uran experimentell bestätigt. Nach Mihul [24] erzeugen 8% der eingefangenen Myonen im Uran Kernspaltungen.

Die beim μ^--Einfang produzierten Neutronen ergeben einen vernachlässigbaren Beitrag zur induzierten Kernspaltung:

$$Z \sim 10^{-5} \; g^{-1} \; min^{-1} \,.$$

3. *Verunreinigung von schweren, spaltenden Elementen*

Der Einfluss des ^{234}U und des ^{235}U des natürlichen Urans bei der Messung der spontanen Kernspaltung von ^{238}U wird bei den Resultaten diskutiert.

In der Natur können in uranhaltigen Mineralien durch Neutronen Transurane gebildet werden. Die Entstehungsrate von ^{239}Pu wurde von Hyde [21] und Seaborg [25] angegeben.

$$^{238}U + n \rightarrow {}^{239}U \xrightarrow{\beta} {}^{239}Np \xrightarrow{\beta} {}^{239}Pu \,.$$

Als Neutronenquellen für die Bildung von ^{239}Pu kommen die spontane Kernspaltung von Uran, die (α, n)-Reaktion, die kosmische Strahlung und die induzierte Spaltung von ^{235}U in Frage. Peppard et al. [26] fanden in Pechblende aus dem Kongo einen Teil ^{239}Pu auf $1{,}4 \cdot 10^{11}$ Teile Uran. Sie fanden keine weiteren Plutonium-Isotope. Mit sehr empfindlichen Messgeräten sollte es möglich sein, auch andere Transurane nachzuweisen. Die Produktion anderer Transurane, vor allem des ^{240}Pu, wird noch auf mehrere Grössenordnungen seltener geschätzt.

Die Americium-Quellen enthalten kleine Plutoniummengen. Unsere Messung kann durch die spontane Kernspaltung von ^{240}Pu mit $T_{1/2} = (1{,}45 \pm 0{,}02) \cdot 10^{11}$ Jahre [27] gestört werden. Um diesen Einfluss auszuschliessen, haben wir mit Quellen verschiedenen Plutoniumgehaltes gearbeitet. Bei der durch Ionenaustausch gereinigten Quelle wurde ebenfalls eventuell in Spuren vorhandenes Curium abgetrennt. Die oberen Grenzen der zurückgebliebenen Verunreinigungen sind aus Tabelle 2 ersichtlich.

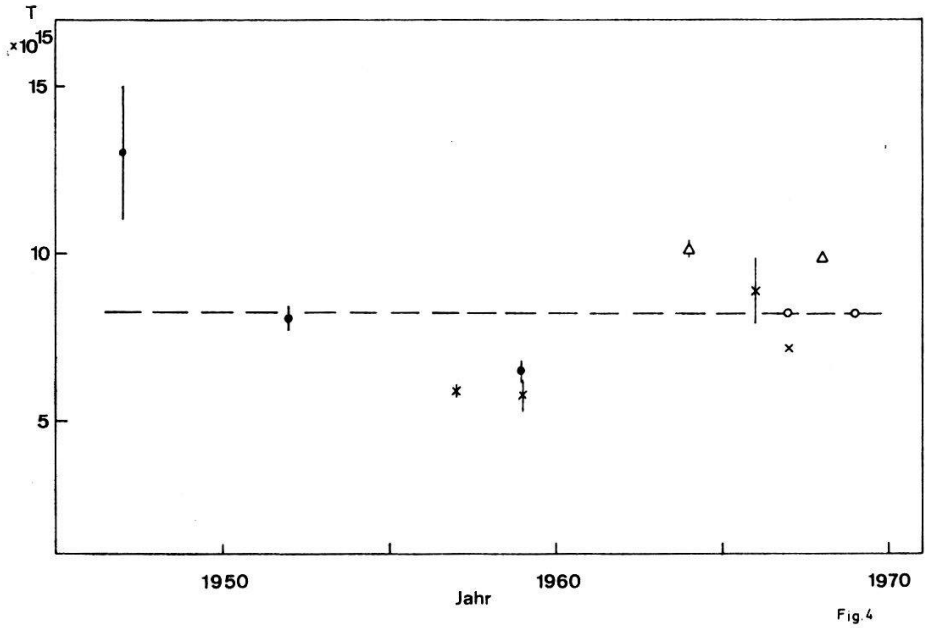
Durch die Verwendung von verschiedenen Glasarten für das Glasgefäss konnte gezeigt werden, dass diese die Messung nicht beeinflusst (Porosität und schwere Elemente im Glas). Es wurden Gefässe aus Quarzglas (Messung 1, 2 und 6 der Uranmessung) und aus Pyrexglas verwendet. Die Zählrate der Kammer mit Alkohol gefüllt ist kleiner als 10^{-4} min^{-1}. Neben Alkohol wurden auch Methylacetat und Azeton als Kammerflüssigkeit verwendet. Für die Halbwertszeit der spontanen Kernspaltung von ^{238}U wurde für diese Flüssigkeiten innerhalb von 2%, was der statistischen Genauigkeit entspricht, das gleiche Resultat gefunden. Die Resultate stimmen bei Verwendung von verschiedenen Konzentrationen des spaltbaren Materials sehr gut miteinander überein, sodass das Vorhandensein einer systematischen Störung (z.B. Kavitation an ungelösten Teilchen) ausgeschlossen werden kann. Bei jedem Ereignis wurde überdies mit einem elektronischen Kontrollsystem überwacht, ob wirklich eine Blase in der Flüssigkeit entstanden war.

Resultate und Diskussion

Uran-238

Die Halbwertszeit der spontanen Kernspaltung von ^{238}U wurde schon von mehreren Autoren [2, 9–11, 28–30, 33, 34] bestimmt. Die gefundenen Werte sind in Figur 4 dargestellt. Unsere gemessenen Zerfallskonstanten sind aus Tabelle 4 zu ersehen. Die sechs Messungen wurden, abgesehen von einer, unter 40 m Fels (Sandstein) ausgeführt. Die mittlere gemessene Wartezeit unter Fels beträgt 2,45 Minuten pro g Uran. In Tabelle 5 sind die Beiträge der spontanen Kernspaltung von ^{234}U und ^{235}U sowie diejenigen der induzierten Kernspaltung bei der Messung über dem Erdboden zusammengestellt. Die Halbwertszeiten der spontanen Kernspaltung betragen für ^{234}U: $T_{1/2} = (2 \pm 1) \cdot 10^{16}$ Jahre [31] und für ^{235}U: $T_{1/2} = (3{,}5 \pm 0{,}9) \cdot 10^{17}$ Jahre [32]. Der Beitrag des ^{234}U und des ^{235}U zur spontanen Kernspaltung des natürlichen Urans ist sehr klein und beträgt $8 \cdot 10^{-5}$ g^{-1} min^{-1}. Die mittlere Wartezeit der durch kosmische Neutronen über dem Erdboden induzierten Kernspaltung ist $\sim$300 Minuten. Dieser Prozess kann das gefundene Resultat um ca. 1% beeinflussen, und es werden deshalb für das Endresultat nur die Messungen unter Fels verwendet. Spadavecchia

[2] untersuchte die Neutronen-induzierte Kernspaltung im ^{232}Th über dem Erdboden und unter Fels (40 m). Es fand eine Abnahme der Zählrate um einen Faktor 200.



Figur 4
Halbwertszeiten der spontanen Kernspaltung von ^{238}U nach verschiedenen Autoren. ⊙ Unsere Messungen mit der Rotationskammer, ● Ionisationskammer, × Radiochemie, △ SSTR. Symbolgrosse Fehler sind nicht eingezeichnet.

Tabelle 4
Messergebnis der spontanen Kernspaltung von ^{238}U.

Kammer	Menge ^{238}U	λ' (g^{-1} sec^{-1})	$T_{1/2}$ (Jahre)
a) Unter 40 m Fels			
Quarz I	2,48 g nat. Uran	$(6{,}88 \pm 0{,}07)\ 10^{-3}$	$(8{,}06 \pm 0{,}08)\ 10^{15}$
Quarz I	2,48 g nat. Uran	$(6{,}74 \pm 0{,}07)\ 10^{-3}$	$(8{,}23 \pm 0{,}09)\ 10^{15}$
Pyrex I	0,87 g nat. Uran	$(6{,}71 \pm 0{,}07)\ 10^{-3}$	$(8{,}27 \pm 0{,}09)\ 10^{15}$
Pyrex II	1,96 g abger. Uran	$(6{,}77 \pm 0{,}07)\ 10^{-3}$	$(8{,}19 \pm 0{,}09)\ 10^{15}$
Quarz I	1,41 g abger. Uran	$(6{,}80 \pm 0{,}07)\ 10^{-3}$	$(8{,}15 \pm 0{,}09)\ 10^{15}$
Mittelwert		$(6{,}78 \pm 0{,}03)\ 10^{-3}$	$(8{,}19 \pm 0{,}06)\ 10^{15}$
b) Über dem Erdboden			
Quarz I	2,38 g nat. Uran	$(6{,}82 \pm 0{,}07)\ 10^{-3}$	$(8{,}13 \pm 0{,}08)\ 10^{15}$

Der Mittelwert aller Messungen für die Halbwertszeit der spontanen Kernspaltung unter Fels ergibt:

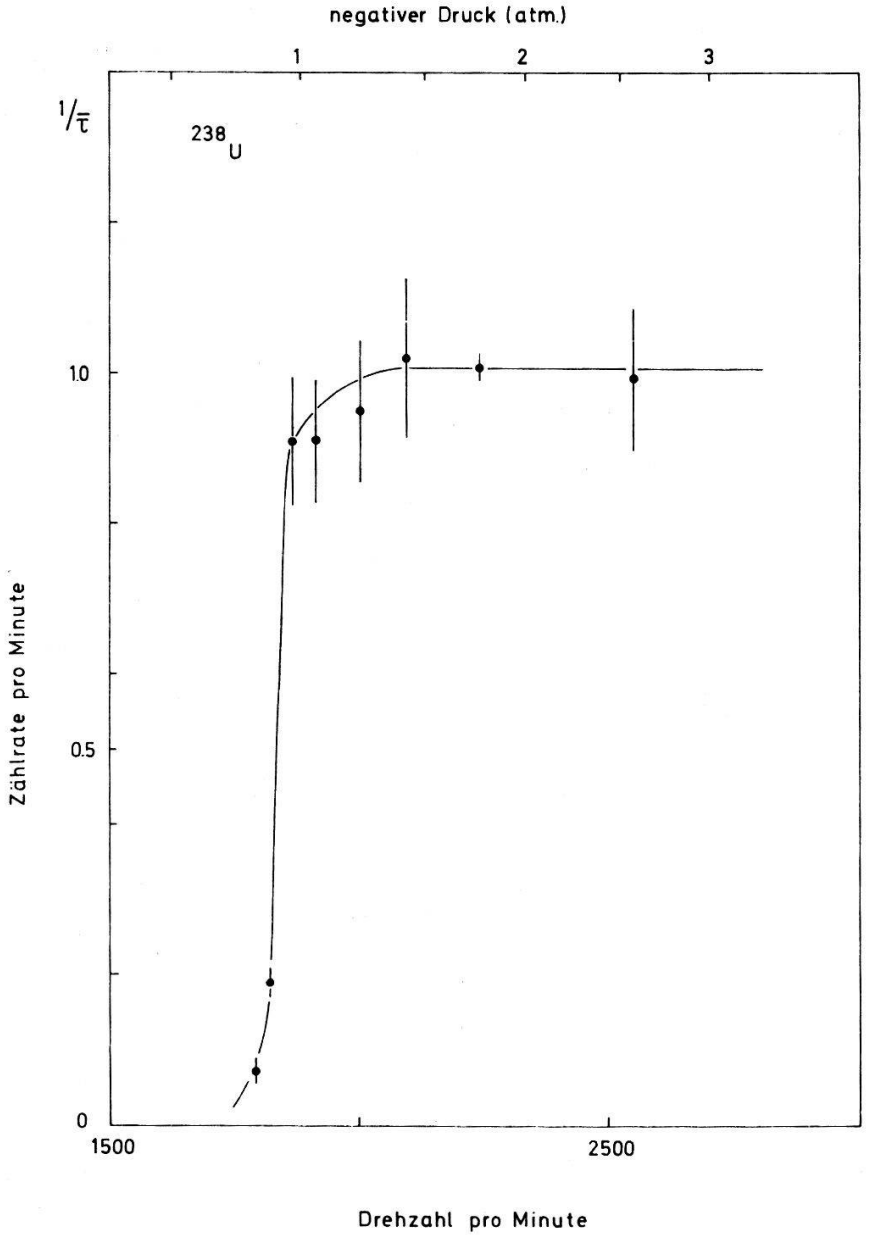
$$T_{1/2} = (8{,}19 \pm 0{,}06)\ 10^{15} \text{ Jahre.}$$

Der angegebene Fehler setzt sich aus dem statistischen Fehler der Anzahl Ereignisse und der übrigen abgeschätzten Fehlerquellen zusammen. Dieses Resultat stimmt innerhalb des statistischen Fehlers mit unserer früheren Messung [2] mit $T_{1/2} = (8{,}23 \pm 0{,}10) \cdot 10^{15}$ Jahre überein. Ferner sind die Werte von Segrè [11] und Rao und

Kuroda [33], welche mit grösseren Fehlern behaftet sind, mit unserem Resultat verträglich. In Figur 5 ist für eine typische Uran-Messung die Zählrate gegen den negativen Druck dargestellt.

Tabelle 5
Beitrag der spontanen Kernspaltung von ^{234}U und ^{235}U und der induzierten Kernspaltung über dem Erdboden bei der Uran-Messung.

Kernspaltung durch	Zählrate/min · g (U_{nat})	
spontane Spaltung von ^{238}U	$4{,}1 \cdot 10^{-1}$	$Z/Z\ ^{238}U$
spontane Spaltung von ^{234}U und ^{235}U	$7{,}8 \cdot 10^{-5}$	$\sim 2 \cdot 10^{-4}$
$Z_{\alpha nf}$	$2{,}6 \cdot 10^{-6}$	$\sim 10^{-5}$
Z_n	$3{,}3 \cdot 10^{-3}$	$\sim 0{,}8 \cdot 10^{-2}$
Z_μ	$8{,}3 \cdot 10^{-6}$	$\sim 10^{-5}$



Figur 5
Zählrate (pro Minute) gegen den negativen Druck für eine typische Uran-Messung.

Rao und Kuroda [33] haben durch Aktivitätsmessungen das Verhältnis $^{132}Te/^{238}U$ bestimmt. Durch Kombination massenspektrometrischer und radiochemischer Daten wurde eine Massenausbeutekurve für die spontane Spaltung von ^{238}U konstruiert und integriert. Sie fanden $T_{1/2} = (8{,}9 \pm 1{,}02) \cdot 10^{15}$ Jahre.

Fleischer und Price [34] bestimmten die Zerfallskonstante der spontanen Kernspaltung aus dem bekannten Alter (K–A- und Rb–Sr-Methode) verschiedener Glasarten und Micas durch die Methode des Auszählens der Spuren von Spaltungsfragmenten und durch Bestimmung des Urangehaltes. Roberts et al. [10] haben die Zerfallskonstante mit natürlichem, vorgeätztem Mica, welches mit einer Uranfolie in Kontakt gebracht wurde, bestimmt und das Resultat von Fleischer und Price bestätigt.

Ishimori et al. [9] haben aus den Zerfallsprodukten der spontanen Kernspaltung Y- und Ce-Isotope abgetrennt. Zusammen mit den Werten anderer Autoren wurde die Massenausbeutekurve konstruiert. Der Fehler dieser Arbeit wurde irrtümlicherweise zu klein angegeben. Er beträgt aus den absoluten Fehlern der Ausbeute bestimmt 2,2%.

Unser Resultat stimmt mit der Messung mit der Ionisationskammer [11] überein und steht im Widerspruch sowohl mit der «Solid-State Track Recorder»-Methode [10, 34] als auch mit der radiochemischen Methode von Ishimori [9].

Americium-241

In Tabelle 6 sind die von verschiedenen Autoren [11–13] gemessenen Werte für die Halbwertszeit der spontanen Kernspaltung von ^{241}Am angegeben. Unsere Messungen wurden mit wesentlich stärkeren Quellen ($\sim$ 10 mCi) durchgeführt. Die gefundenen Resultate sind aus Tabelle 7 ersichtlich. Obwohl theoretisch kein Unterschied zu erwarten war, untersuchten wir vorerst die Quelle auf ihr Verhalten gegenüber induzierten Kernspaltungen über der Erde und unter 40 m Fels.

Tabelle 6
Halbwertszeiten der spontanen Kernspaltung vom ^{241}Am gemessen von verschiedenen Autoren.

Autor	Jahr	Methode	Halbwertszeit (Jahre)
Segré	1952	Ionisationskammer	$\geqslant 1{,}4 \cdot 10^{13}$
Mikheev et al.	1960	Xenon-Gas-Szintillationszähler	$> 20 \cdot 10^{13}$
Druin et al.	1961	Xenon-Gas-Szintillationszähler	$(23 \pm 8)\ 10^{13}$
unsere Messung	1969	Rotationskammer	$(9{,}0 \pm 0{,}4)\ 10^{13}$

Es konnte innerhalb der statistischen Genauigkeit von 1,6% kein Unterschied in der Zählrate festgestellt werden. Die Quelle wurde hierauf auf einer Kationenaustauschersäule gereinigt.

Die Reinigung und Aktivitätsmessung der Americiumquelle wurde freundlicherweise von EIR ausgeführt. Dabei wurden das Plutonium und eventuell in Spuren vorhandenes Curium abgetrennt.

Der Anteil der induzierten Spaltung beträgt, wie man aus Tabelle 8 ersehen kann, etwa 0,5%. Der Hauptanteil ergibt sich aus den (α, n, f)-Reaktionen.

Tabelle 7
Messergebnis der spontanen Kernspaltung von ^{241}Am.

Messung	Quelle	Pu-Gehalt	λ' (g^{-1} sec^{-1})	$T_{1/2}$ (Jahre)
Test 1	16,1 mCi (unter Fels)	< 2000 ppm	0,62 ± 0,02	(8,8 ± 0,3) 10^{13}
Test 2	16,1 mCi (über der Erde)	< 2000 ppm	0,63 ± 0,02	(8,7 ± 0,3) 10^{13}
1	13,9 mCi (unter Fels)	< 20 ppm	0,60 ± 0,02	(9,1 ± 0,3) 10^{13}
2	11,4 mCi (über der Erde)	< 50 ppm	0,61 ± 0,03	(9,0 ± 0,4) 10^{13}

Tabelle 8
Anteil der induzierten Kernspaltung bei der ^{241}Am-Messung.

Kernspaltung durch	Zählrate pro min · mg (^{241}Am)	
spontane Spaltung von ^{241}Am	$3{,}5 \cdot 10^{-2}$	
		Z/Z ^{241}Am
$Z_{\alpha nf}$	$2{,}1 \cdot 10^{-4}$	$0{,}6 \cdot 10^{-2}$
Z_n (über der Erde)	$7{,}9 \cdot 10^{-6}$	$2 \cdot 10^{-4}$

Die zweite Quelle wurde von der Herstellerfirma speziell gereinigt und enthielt nach deren Angaben weniger als 50 ppm Plutonium. Obwohl die verschiedenen Quellen verschiedene obere Grenzen für die Pu-Kontamination besitzen, sind die Resultate der Einzelmessungen der Tabelle 7 innerhalb der statistischen Fehler miteinander verträglich. Aus diesem Resultat und aus der Halbwertszeit der spontanen Spaltung von ^{240}Pu kann geschlossen werden, dass eine ^{240}Pu-Verunreinigung kleiner sein muss als 10 ppm.

Der von uns gemessene Mittelwert für die Halbwertszeit der spontanen Kernspaltung von ^{241}Am beträgt:

$$T_{1/2} = (9{,}0 \pm 0{,}4)\ 10^{13} \text{ Jahre.}$$

Der statistische Fehler der Zählrate unseres Experimentes beträgt 1,5%. Der Hauptanteil des angegebenen Fehlers kommt von der Ungenauigkeit bei der Mengenbestimmung des Americiums. Bei den früheren Untersuchungen [11–13] wurden nur etwa 10 Ereignisse gezählt.

Die Resultate für ^{238}U und ^{241}Am sind beide innerhalb einer Grössenordnung verträglich mit theoretisch vorhergesagten Halbwertszeiten nach dem Tröpfchenmodell mit Berücksichtigung der Abweichungen der wirklichen Kernmassen gegenüber einer halbempirischen Massenformel [39]. Sie zeigen deutlich den Unterschied zwischen gerade-gerade Kern (^{238}U) und Kern mit ungeradem A (^{241}Am), welche sich für gleiches Z^2/A um ca. 5 Zehnerpotenzen in der Halbwertszeit der spontanen Spaltung unterscheiden [38, 39].

Verdankungen

Herrn Dr. K. Borer möchten wir für seine Unterstützung und die Konstruktion der Kontrollelektronik danken. Unser Dank gilt auch den Herren Drs. F. H. Poesposoetjipto und P.-G. Seiler für wertvolle Diskussionen.

Dem Eidg. Institut für Reaktorforschung (EIR) in Würenlingen sprechen wir für die freundliche Unterstützung und Hilfe den besten Dank aus. Unser Dank gilt vor allem den Herren Dr. P. Bertschi, Dr. K. Buob und Herrn F. Rudin. Herrn Dr. H. R. von Gunten sind wir zu grossem Dank verpflichtet für die Mengenbestimmung des ^{241}Am und die Reinigung einer Americium-Quelle. Frau T. Chassot, Fräulein M. B. Sauter, Fräulein E. Tank und den Herren P. Heimo, H. Jungo und J.-C. Roulin danken wir für die uns jederzeit gewährte ausgezeichnete Hilfe. Der Verwaltung des Kraftwerkes Hauterive danken wir für die freundliche Aufnahme.

Herrn Prof. Dr. O. Huber danken wir für sein stets förderndes Interesse bestens.

Dem Schweizerischen Nationalfonds verdanken wir die Bereitstellung der finanziellen Mittel, ohne welche das Experiment nicht hätte durchgeführt werden können.

LITERATURVERZEICHNIS

[1] B. Hahn, Nuov. Cim. *22*, 650 (1961).
[2] A. Spadavecchia, B. Hahn, Helv. phys. Acta *40*, 1063 (1967).
[3] B. Hahn, A. Spadavecchia, Nuov. Cim. *54B*, 101 (1968).
[4] P. B. Price and R. M. Walker, J. appl. Phys. *33*, 3400 (1962).
[5] R. L. Fleischer et al., Ann. R. Nucl. Sci. *15*, 1 (1965).
[6] G. A. Wagner, Z. Naturf. *21a*, 733 (1966).
[7] W. Gentner et al., Earth and Plan. Sci. Lett. *2*, 83 (1967).
[8] R. Gold et al., Nucl. Sci. Engng. *34*, 13 (1968).
[9] T. Ishimori et al., Radiochimica acta *7*, 95 (1967).
[10] J. H. Roberts et al., P.R. *174*, 1482 (1968).
[11] E. Segrè, P.R. *86*, 21 (1952).
[12] V. L. Mikheev et al., Sov. Phys. JETP *10*, 612 (1960).
[13] A. Druin et al., Sov. Phys. JETP *13*, 889 (1961).
[14] R. E. Stone, and E. K. Hulet, J. Inorg. nucl. Chem. *30*, 2003, (1968).
[15] F. L. Oetting, and S. R. Gunn, J. Inorg. nucl. Chem. *29*, 2659, (1967).
[16] V. E. Viola jr. and B. D. Wilkins, N.P. *82*, 65 (1966).
[17] E. Hugentobler et al., Helv. phys. Acta *36*, 601 (1963).
[18] R. Keil, Z. anal. Chem. *244*, 165 (1969).
[19] E. Amaldi, Handb. der Physik *38/2*, 108 (1959).
[20] W. N. Hess et al., J. Geophys. Res. *66*, 665 (1961).
[21] E. K. Hyde et al., *The Nuclear Properties of Heavy Elements* (Prentice-Hall, New Jersey 1964).
[22] B. Rossi, R. mod. Phys. *20*, 537 (1948).
[23] W. Galbraith et al., Phil. Mag. *44*, 77 (1953).
[24] A. K. Mihul et al., Dubna Report 1958 (siehe Ref. [22]).
[25] G. T. Seaborg et al., *The Transuranium Elements* (New York 1949).
[26] D. F. Peppard, J. Am. Chem. Soc. *73*, 2529 (1951).
[27] L. Z. Malkin et al., Atom. Energ. (USSR) *15*, 158 (1963).
[28] P. K. Kuroda, R. R. Edwards, 13. Inorg. Nucl. Chem. *3*, 345 (1957).
[29] E. K. Gerling et al., Radiokhimiia *1*, 223 (1959).
[30] N. A. Perfilov, Sov. Phys. JETP *17*, 746 (1947).
[31] A. Ghiorso et al., P.R. *87*, 163 (1952).
[32] B. M. Aleksandrov et al., J. Nucl. Energy *21*, 193 (1967).
[33] M. N. Rao and P. K. Kuroda, P.R. *147*, 884 (1966).
[34] R. L. Fleischer and P. B. Price, P.R. *133*, B63 (1964).
[35] A. Druin et al., Sov. Phys. JETP *13*, 913 (1961).
[36] G. N. Flerov et al., Sov. Phys. Doklady *3*, 79 (1958).
[37] B. D. Kuz'minov et al., Sov. Phys. JETP *37*, 290 (1960).
[38] W. J. Swiatecki, P.R. *101*, 97 (1956).
[39] D. W. Dorn, P.R. *121*, 1740 (1961).