



Abb. 4. Parallelstrahllaufnahme nach Abb. 1 an einem Si Kristall mit 2500 Ätzgruben pro cm^2 , 10,5-fach vergrößert, 1 mm stark, blankgeätzte 111-Oberfläche, Richtung anomaler Absorption 220, Cu K-Strahlung, 25 kV, 10 mA, 8 h **.

bei Durchstrahlung im Kristallinneren von Si nachgewiesen.

Man sieht hieraus, daß auch die Parallelstrahlmethode im Durchstrahlungsfall außerordentlich empfindlich auf atomare Störungen des Kristallgitters reagieren muß. Die mit der Parallelstrahlmethode Ende des Jahres 1957 durchgeföhrten – noch nicht veröffentlichten – Untersuchungen des Kristallinneren einer Anzahl von Si und Ge Kristallen haben tatsächlich Schatten im R-Strahlenbündel

ergeben, die jetzt als Verzerrungsfelder von Versetzungen gedeutet werden können. In Abb. 4 ist ein Si-Kristall mit der Parallelstrahlmethode geprüft worden, von dem bereits BORRMANN, HARTWIG und IRMLER ein Weitwinkeldiagramm veröffentlicht haben. Das Wellenfeld verläuft in anomaler Absorption parallel zu einer Netzebene 220. Hierbei wird das Kristallinnere über einer Oberfläche von etwa 1 cm^2 durchstrahlt. Die Abbildung zeigt nur einen Ausschnitt der Aufnahme. Aus den Schatten können Richtung und Lage der Versetzungslinien im Kristallinnern sowie die Größe ihrer Verzerrungsfelder gedeutet werden. Die Schatten auf der Parallelstrahlauflaufnahme sind in guter Übereinstimmung mit denen des Weitwinkeldiagramms. Bei weiteren – noch nicht veröffentlichten – Untersuchungen an verschiedenen gezüchteten und verschieden nachbehandelten Si und Ge Kristallen sowie auch an einigen Quarz- und Kalkspatkristallen hat sich die Parallelstrahlmethode gerade für Probleme der Kristallzüchtung von Einkristallhalbleitern als brauchbar erwiesen.

Dem Berliner Senat möchten wir für die finanzielle Unterstützung des Vorhabens danken. Herrn Prof. Dr. M. von LAUE, Herrn Prof. Dr. G. BORRMANN und Herrn Dr. W. HARTWIG danken wir für anregende Diskussionen und freundliche Unterstützung.

** Die Aufnahmen wurden mit einer von H. BARTH entwickelten Gefügekammer gemacht. Dem Werkstattleiter Herrn SCHULZ und Herrn SCHRÖDER möchte ich bei dieser Gelegenheit für die präzise Herstellung der Gefügekammer herzlich danken.

NOTIZEN

Einige Versuche zur Diffusion von Xe-133 aus Uranoxyden

Von R. LINDNER und H. J. MATZKE

Kernchemisches Institut * der Technischen Hochschule, Göteborg, Schweden
(Z. Naturforsch. 13 a, 794–796 [1958]; eingegangen am 29. Juni 1958)

Das Entweichen von gasförmigen Spaltprodukten aus bestrahltem Uran und dessen Verbindungen ist eine Frage von kerntechnischer Bedeutung. (Vermeidung des Entweichens aus Brennstoffelementen aus Sicherheitsgründen oder aber laufende Entfernung der als Neutronengifte wirksamen Edelgase aus dem Brennstoff.)

Laboratoriumsversuche an Uranmetall und Uranoxyd

(UO_2) wurden am hiesigen Institut vor längerer Zeit von ZIMEN¹ und Mitarbeitern begonnen. Für die im folgenden beschriebenen Versuche, wie auch für einige von Dr. G. STRÖHL ausgeführte orientierende Versuche an Sintermaterial, wurde eine seinerzeit von FELIX² aufgestellte Apparatur benutzt. Das Ziel der vorliegenden Untersuchung war, zunächst die prinzipielle Möglichkeit der Messung der Diffusion von Xe-133 aus kristallinen Uranoxyden festzustellen und Anhaltspunkte für die Absolutwerte der Diffusionskonstanten und die Aktivierungsenergie der Diffusion in verschiedenen Uranoxyden zu erhalten.

* Betrieben vom Schwedischen Atomkomitee.

¹ K. E. ZIMEN u. L. DAHL, Z. Naturforsch. 12 a, 167 [1957].

² F. FELIX, Nukleonik 1 [1958], im Druck.



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

Als Ausgangsmaterial für den überwiegenden Teil unserer Versuche wurde reaktorreines UO_2 verwendet ($< 0,1 \text{ ppm}$ B und $< 100 \text{ ppm}$ Na und Ca). Zwecks Herstellung von Einkristallen definierter Korngröße wurde das Pulver mittels ANDREASEN-Pipette³ in geeignete Fraktionen unterteilt. Fraktionen mit einer mittleren Korngröße von $0,63 \mu$ und $0,98 \mu$ (Korngrößenfeststellung durch BET-Bestimmung⁴ und durch Auszählung der Korngrößenverteilung elektronenmikroskopischer Aufnahmen) wurden durch Erhitzen in Argonatmosphäre bei 1000°C während 24 Stunden rekristallisiert und im Stockholmer Reaktor R 1 mit einer durchschnittlichen Dosis von $6 \cdot 10^{16}$ bis $10^{17} \text{ Neutronen/cm}^2$ bestrahlt.

Nach Abklingen der kurzlebigen Xenonisotope (insbesondere Xe-135 mit $9,2 \text{ h}$ Halbwertszeit) wurde das Präparat in dünner Schicht in ein Quarzschliffrohr eingeführt, dieses an die erwähnte Apparatur angeschlossen und mittels eines vorgewärmten überzuschiebenden Ofens rasch auf die Versuchstemperatur gebracht.

Nach dem jeweiligen Zeitintervall wurde das entweichende Spaltgas (nach Passieren einer Jodfalle aus Silberwolle, um die langlebigen Jodisotope, insbesondere J-131 mit $8,05 \text{ Tagen}$ Halbwertszeit zurückzuhalten) mittels „Töplern“ gleichmäßig über das Volumen der Apparatur verteilt und in der Meßkammer durch ein mittels Schliff eingeführtes Zählrohr gemessen. Die spezifische Aktivität des Präparates an Xe-133 (Halbwertszeit $5,27 \text{ d}$) wurde durch Anschluß eines Auflösungsgefäßes an die gleiche Meßapparatur und Auflösung eines aliquoten Teiles des Pulvers in konzentrierter Salpetersäure und Austreiben des Gases mittels Erwärmung bestimmt. Bei verschiedenen Wartezeiten nach Ende der Bestrahlung betrug die gesamte Xenonaktivität der jeweils verwendeten UO_2 -Mengen ($10 - 50 \text{ mg}$) in vorliegender Apparatur $10\,000 - 100\,000 \text{ ipm}$. Im Falle einiger Kontrollbestimmungen an Sintermaterial (geringere Gasentwicklung) wurden Gesamtaktivitätsmengen von etwa $500\,000 \text{ ipm}$ eingesetzt.

Gemäß der Diffusionsgleichung für kleine Zeiten gilt in vorliegendem Fall⁵:

$$A_t^G/A_0^S = 2 \exp(-\lambda t) \sqrt{D t / \pi F/V}$$

(A_0^S = Ausgangsaktivität des Pulvers, A_t^G = jeweilige Aktivität im Gasraum, F = Oberfläche, V = Volumen des Materials).

Die im Gasraum beobachtete Xe-Menge nahm mit der Wurzel der Zeit zu. Die Diffusionskonstanten konnten nach obiger Gleichung berechnet werden.

Zwei charakteristische Versuche an UO_2 sind in Abb. 1 wiedergegeben, welche die prozentuelle Auffüllung des Gasraumes mit Xenon als Funktion der Wurzel der Zeit zeigt.

Es wurde zunächst noch nicht die Beseitigung aller Spuren von Sauerstoff angestrebt, weshalb spätere Werte für UO_2 noch etwas tiefer liegen könnten. Wie durch RÖNTGEN-Aufnahmen bestätigt wurde, nimmt UO_2 im

fraglichen Temperaturgebiet bekanntlich begierig Sauerstoff auf; in einigen Versuchen waren höhere Oxyde und deren Mischungen festzustellen⁶. (Solche Versuche wurden aber nicht in die Darstellung der Abb. 2 aufgenommen, sondern hier handelt es sich um Präparate, bei denen schon die Bestrahlung in mit Argon gefüllten Quarzampullen ausgeführt wurde.)

Außerdem sind in Abb. 2 wiedergegebene Versuche an reinem U_3O_8 sowie an „ UO_2 “ in Luft. Die Werte (gefüllte und offene Kreise zur oberen Geraden) sind praktisch identisch. Die untere Gerade (UO_2) in Abb. 2 entspricht einer Aktivierungsenergie von 34 kcal, ein geringerer Wert als der (wohl zuverlässiger) von Booth⁷, der 45 kcal im Temperaturbereich 1000 bis 1500°C erhielt; die obere Gerade (U_3O_8) entspricht einer Aktivierungsenergie von 21 kcal. Eine eindeutige Zuordnung von im Zwischengebiet liegenden Diffusionswerten zu der Konzentration von Zwischenphasen wie U_4O_9 und U_5O_{13} ist zunächst noch nicht möglich.

Als wesentliche bisherige Ergebnisse erscheinen außer der annähernden Bestätigung der Werte für UO_2 die höheren Diffusionskonstanten für U_3O_8 sowie die markante Sauerstoffsensibilität der Diffusionswerte. Dieses tritt besonders bei Sinterkörpern hervor, bei denen die Oxydation von einem gleichzeitigen beschleunigten Zerfall des Sinterkörpers in seine Kristallite begleitet ist. In einem solchen Fall konnte bei analogen Versuchen ohne und mit Luftzutritt bei 1100°C festgestellt werden, daß die bei Luftzutritt freigesetzte Xenonmenge etwa um den Faktor 50, folglich die Diffusionskonstante um etwa 3 Zehnerpotenzen höher liegt. (Auf diese Art könnte die Oxydation von UO_2 und mittelbar das Vorhandensein geringer Sauerstoffmengen im Gasraum auf umständliche, aber empfindliche Weise festgestellt werden.)

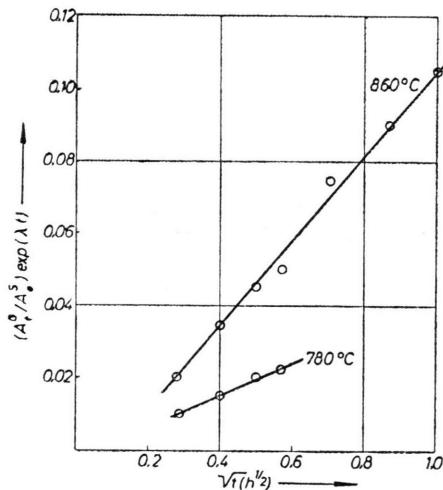


Abb. 1. Entweichende Xenonmenge (in % der Gesamtmenge) als Funktion der Zeit.

³ W. INTHOFF u. K. E. ZIMEN, Trans. Chalmers Univ. Techn. No. 176 [1956].

⁴ J. BELLE u. B. LUSTMAN, WAPD-184 [1957].

⁵ A. H. BOOTH, CRDC-720 [1957].

⁶ A. H. M. ANDREASEN u. J. J. V. LUNDBERG, Ber. Deutsch. Ker. Ges. 11, 249 [1930].

⁷ S. BRUNAUER, P. H. EMMETT u. E. TELLER, J. Amer. Chem. Soc. 60, 309 [1938].

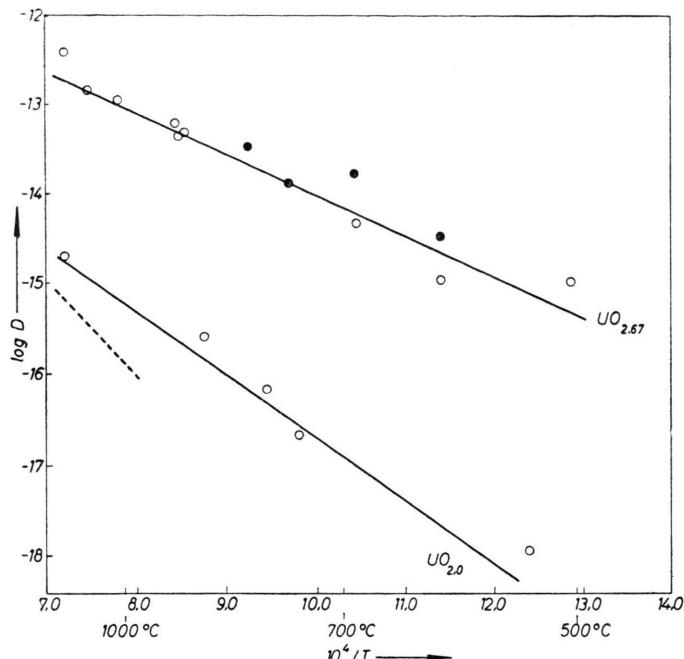


Abb. 2. Temperaturfunktion der Diffusionskonstanten (gestrichelte Linie nach Booth⁷).

Die Versuche sollen fortgesetzt werden, wobei insbesondere die Sauerstoffabhängigkeit der Xenondiffusion untersucht werden soll.

Wir danken dem Schwedischen Atomkomitee für Unterstützung, der AB Atomenergi (Doz. R.

KISSLING) für Überlassung von reinem UO_2 , dem Reaktorpersonal (Ing. T. PETERSÉN) für Bestrahlungen, Tekn. lic. N. G. VANNERBERG vom Inst. f. anorg. Chemie (Professor C. BROSSET) für RÖNTGEN-Analysen und Fr. L.-M. HAGSTED für elektronenmikroskopische Aufnahmen.

Zerfallsschema und β -Spektrum des Mesothor 1 (Ra^{228})

Von G. GOETZE und E. HUSTER

Physikalisches Institut der Universität Marburg

(Z. Naturforsch. 13 a, 796—797 [1958]; eingegangen am 21. Juli 1958)

LEE und LIBBY¹ bestimmten 1939 die Maximalenergie der vom $MsTh\ 1$ emittierten Elektronen durch Absorptionsmessungen und durch Messung in einem Netzzählrohr im Magnetfeld zu 53 ± 4 keV. Sie ließen es offen, ob dies die obere Grenzenergie eines β -Spektrums oder die Energie von Konversionselektronen einer noch nicht beobachteten γ -Strahlung ist. Die Strahlung des $MsTh\ 1$ wurde weiterhin von einer französischen Gruppe untersucht. LECOIN, PEREY und TEILLAC² fanden 1949 (in der Nebelkammer bei niedrigem Druck) auf 100 Zerfälle 15 Elektronen mit Energien zwischen

1,5 und 18 keV, deren spektrale Verteilung Linien bei 3 und 7 keV und vielleicht bei 12 keV anzudeuten schien. LECOIN, PEREY und RIOU³ bestätigten den geschilderten Befund. Sie fanden außerdem auf 100 Zerfälle $4 \pm 1,5$ Photonen von etwa 15 keV. Nach dem von ihnen danach vorgeschlagenen Zerfallsschema führen 15% der Zerfälle auf ein angeregtes Niveau des $MsTh\ 2$ bei etwa 30 keV, 85% auf den Grundzustand. Unkonvertierte γ -Strahlung wurde nicht gefunden⁴. Die gefundenen Elektronen wurden als Konversionselektronen, die Photonen als der Konversion folgende Ac-L-Quanten gedeutet. β -Teilchen wurden für keinen der beiden Übergänge gefunden, obwohl für den Übergang in den Grundzustand die obere Grenzenergie $E_0 > 30$ keV sein müßte. Die Verfasser erklären dies damit, daß nahezu alle β -Teilchen Energien unter 1,5 keV haben müßten.

Falls dies zuträfe, müßte der β -Übergang hoch verboten sein. Dem widerspricht jedoch, daß sich mit einer Halbwertszeit von $T = 6,7$ a und einer Zerfallsenergie

¹ D. D. LEE u. W. F. LIBBY, Phys. Rev. 55, 252 [1939].

² P. M. LECOIN, M. PEREY u. J. TEILLAC, J. Phys. Radium 10, 33 [1949].

³ P. M. LECOIN, M. PEREY u. M. RIOU, J. Phys. Radium 10, 390 [1949].

⁴ M. RIOU, Ann. Phys., Paris 8, 535 [1953].