

NOTIZEN

Voraussage der wahrscheinlichsten Kernladung primärer Spaltprodukte durch die Regel der gleichen Ladungsverschiebung und eine neue Massenformel

Von JÜRGEN FIEDLER und GÜNTER HERRMANN

Institut für Anorganische Chemie und Kernchemie der Universität Mainz

(Z. Naturforsch. 18 a, 553–554 [1963]; eingegangen am 26. März 1963)

Die wahrscheinlichste Kernladung Z_p primärer Spaltprodukte zeigt, wie sich Protonen und Neutronen auf beide Bruchstücke verteilen. Wovon die Aufteilung abhängt, hofft man an den Z_p -Werten verschiedener Spaltketten und Spaltreaktionen erkennen zu können. Wegen experimenteller Schwierigkeiten ist der Gang mit der Massenzahl – die Z_p -Funktion – gegenwärtig nur für die Spaltung von Uran-235 durch thermische Neutronen hinreichend bekannt. Zum Verständnis dieser Z_p -Funktion und zur Voraussage unbekannter Z_p -Werte sucht man Z_p mit anderen Kerndaten zu verknüpfen. Dazu wurden folgende empirische oder theoretisch begründete Regeln vorgeschlagen¹:

1. Konstante spezifische Ladung. Die Protonen teilen sich im gleichen oder angenähert gleichen Verhältnis wie die Kernmassen auf. Diese Regel gilt wahrscheinlich für die Spaltung stark angeregter Kerne.

2. Gleiche Ladungsverschiebung. Die wahrscheinlichste Kernladung Z_p ist gegen die stabilste Kernladung Z_A der isobaren Kerne bei beiden Bruchstücken gleich weit verschoben (s. u.).

3. Größte Energiefreisetzung. Z_p ergibt die größte Differenz zwischen der gespaltenen und den entstehenden Kernmassen.

4. Minimale potentielle Energie. Z_p führt zur kleinsten Summe von Bruchstückmassen und COULOMB-Energie zwischen den Bruchstücken.

Zufriedenstellend erklärt keine dieser Regeln die experimentellen Z_p -Werte für $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{F})$ ³. Daraus folgt nicht zwingend, daß die Regeln unbrauchbar sind. Denn die Bezugsgrößen, stabilste Kernladungen Z_A oder

Bruchstückmassen, werden mit Massenformeln berechnet; verschiedene Massenformeln geben recht unterschiedliche Z_p -Funktionen³. Neuerdings ist eine Massenformel entwickelt worden⁵, welche die bekannten Kernmassen genauer wiedergibt als bisher verwendete Formeln. Mit nach dieser Formel berechneten Z_A -Werten⁶ haben wir die Regel der gleichen Ladungsverschiebung⁷ erneut geprüft.

Aus der Definitionsgleichung

$$(Z_A - Z_p)_1 = (Z_A - Z_p)_s$$

und der Protonen- und Neutronenbilanz folgt, je nachdem ob man die Regel vor oder nach der Emission prompter Neutronen aus den Bruchstücken anwendet,

$$Z_p' = Z_A' - \frac{1}{2}(Z_A' + Z_{A_c'} - Z_f)$$

$$\text{bzw. } Z_p = Z_A - \frac{1}{2}(Z_A + Z_{A_c} - Z_f)$$

mit

$$A' = A + \nu \quad \text{und} \quad A_c' = A_f - A' \quad \text{bzw.} \quad A_c = A_f - A' - \nu_c.$$

Z_p, Z_p' wahrscheinlichste Kernladung primärer Spaltprodukte mit der Massenzahl A , berechnet vor (Z_p') oder nach (Z_p) der Neutronenemission,

Z_A, Z_A' stabilste Kernladung isobarer Kerne der Massenzahl A bzw. A' ,

$Z_{A_c}, Z_{A_c'}$ stabilste Kernladung der zu A bzw. A' komplementären isobaren Kerne,

Z_f, A_f Kernladungs- und Massenzahl des spaltenden Kerns,

l, s leichtes bzw. schweres Bruchstück,

ν, ν_c mittlere Zahl der vom Bruchstück A' bzw.

A_c' abgedampften prompten Neutronen,

nach^{8, 9}.

Wie aus den Beziehungen zu ersehen ist, geht neben Z_A auch die Zahl der vom Spaltbruchstück emittierten Neutronen in die Berechnung von Z_p ein. APALIN et al.¹⁰ und WHETSTONE¹¹ haben experimentell nachgewiesen, daß diese Anzahl stark von der Massenzahl des Bruchstücks abhängt. Genauer als durch direkte Messung kann sie durch Vergleich von Massenausbeuten vor und

¹ Einzelheiten und ausführliche Literaturhinweise in den Anm. 2–4.

² A. C. WAHL, R. L. FERGUSON, D. R. NETHAWAY, D. E. TROUTNER u. K. WOLFSBERG, Phys. Rev. **126**, 1112 [1962].

³ C. D. CORYELL, M. KAPLAN u. R. D. FINK, Canad. J. Chem. **39**, 646 [1961].

⁴ G. HERRMANN, Habilitationsschrift, Mainz 1962, ergänzte Fassung erscheint demnächst.

⁵ L. A. KÖNIG, H. KÜMMEL, J. H. E. MATTAUCH, W. THIELE u. A. H. WAPSTRA, Vortrag während der „Discussions on Nuclear Chemistry“, Oxford, Sept. 1962.

⁶ J. H. E. MATTAUCH u. W. THIELE, persönl. Mitt., Jan. 1963.

⁷ L. E. GLENDENIN, C. D. CORYELL u. R. R. EDWARDS, in C. D. CORYELL u. N. SUGARMAN (Herausg.), Radiochemical Studies: The Fission Products, McGraw-Hill, New York 1951, S. 489. — A. C. PAPPAS, Proc. 1st Conf. Peaceful Uses Atomic Energy, United Nations, New York 1956, Bd. 7, S. 19.

⁸ J. TERRELL, Phys. Rev. **127**, 880 [1962].

⁹ H. FARRAR u. R. H. TOMLINSON, Canad. J. Phys. **40**, 943 [1962].

¹⁰ V. F. APALIN, J. P. DOBRYNIN, V. P. ZACHAROVA, I. E. KUTIKOV u. L. A. MIKHAELIAN, Atomnaya Energiya **8**, 15 [1961], dtsh. Übers. Kernenergie **3**, 633 [1960].

¹¹ S. L. WHETSTONE, Phys. Rev. **114**, 581 [1959]. — S. L. WHETSTONE u. W. E. STEIN, Bull. Amer. Phys. Soc. **4**, 460 [1959].



nach der Neutronenemission ermittelt werden; deshalb werden hier auf diese Weise erhaltene Neutronenausbeuten^{8, 9} benutzt.

In Abb. 1 und 2 sind Z_A und Z_p gegen die Massenzahl A der Spaltkette aufgetragen. Um den allgemeinen Gang von Z_A und Z_p mit A auszugleichen, ist als Ordinate $Z = 0,4 \cdot A$ gewählt worden.

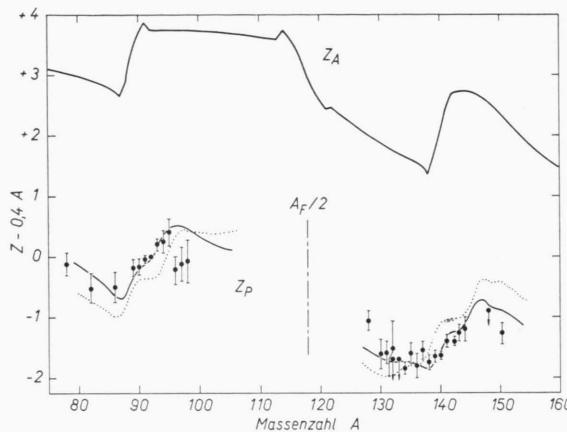


Abb. 1. Die stabilste Kernladung Z_A isobarer Kerne und die wahrscheinlichste Kernladung Z_p primärer Spaltprodukte bei der Spaltung von Uran-235 durch thermische Neutronen sind gegen die Massenzahl A der Spaltketten aufgetragen. Die Z_p -Werte wurden nach der Regel der gleichen Ladungsverschiebung⁷ aus den Z_A -Werten der Massenformel von KÖNIG et al.^{5, 6} berechnet, und zwar vor (.....) und nach (—) der Emission prompter Neutronen. Neutronenausbeuten wurden der Arbeit von FARRAR und TOMLINSON⁹ entnommen. Die Punkte sind radiochemisch bestimmte Z_p -Werte mit ihren Fehlerspannen^{2, 3}.

In Abb. 1 wird die Z_A -Funktion mit der Z_p -Funktion für $^{235}\text{U}(\text{n}_{\text{th}}, \text{F})$ verglichen. Die Z_p -Funktion wurde vor und nach der Neutronenemission berechnet; welche der beiden Neutronenausbeutekurven man benutzt, macht wenig aus. Die Punkte sind radiochemisch bestimmte Z_p -Werte mit ihren Fehlerspannen^{2, 3}. Damit Z_p -Werte auch dann angegeben werden können, wenn nur von einem Kettenglied die primäre Spaltausbeute bekannt ist, wird nach WAHL et al.² eine für alle Spaltketten gleiche Häufigkeitsverteilung der primären Ausbeuten um die wahrscheinlichste Kernladung angenommen. Die berechneten Z_p -Werte stimmen mit den experimentell gefundenen besser überein, als wenn Z_A -Werte anderer Autoren oder die Regel 4 mit anderen Massenformeln verwendet werden, wie ein Vergleich mit den Abb. 1 entsprechenden Darstellungen bei CORYELL et al.³ lehrt.

Dem steilen Anstieg kurz unterhalb der Massenzahl 130 folgen die berechneten Z_p -Funktionen allerdings nicht. Die abweichenden Z_p -Werte der Ketten 96, 97 und 98 fallen auch aus der experimentell ermittelten Z_p -Funktion heraus, wenn man die beiden Äste aufeinanderklappt². Daß die nach der Neutronenemission berech-

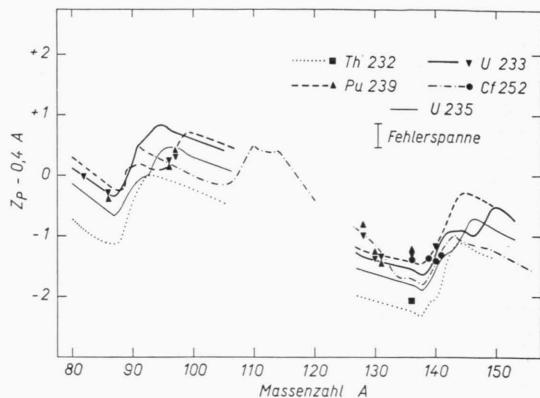


Abb. 2. Vergleich berechneter Z_p -Funktionen für die Spaltung von Thorium-232 durch Spaltneutronen, von Uran-233, Uran-235 und Plutonium-239 durch thermische Neutronen und Californium-252 durch spontanen Zerfall. Die Regel der gleichen Ladungsverschiebung wurde nach der Emission prompter Neutronen angewandt. Die Punkte sind radiochemisch bestimmte Z_p -Werte^{2, 3}; sie haben ungefähr die gezeigte Fehlerspanne, ausgenommen die Werte für $A=139, 140$ und 141 bei $^{252}\text{Cf}(\text{sp}, \text{F})$, welche nur um den Durchmesser der Punkte unsicher sind.

nete Funktion günstiger erscheint, braucht bei einer empirischen, bestenfalls qualitativ begründeten¹² Regel nicht zu verwundern.

In Abb. 2 werden Z_p -Funktionen verschiedener Spaltreaktionen miteinander und mit den wenigen experimentellen Daten verglichen. Die Neutronenausbeuten wurden hier für alle Reaktionen mit den von TERRELL⁸ vorgeschlagenen linearen Beziehungen

$$\nu_1 = 0,08 (A_1 - 82), \quad \nu_s = 0,10 (A_s - 126)$$

berechnet. Diese Vereinfachung scheint erlaubt, denn der Verlauf der Neutronenausbeutekurven ist noch nicht genau bekannt; zudem erhält man gegenüber Abb. 2 nur geringfügig veränderte Z_p -Funktionen, wenn man die jeder Spaltreaktion eigenen Neutronenausbeuten verwendet. Die wenigen experimentellen Z_p -Werte^{2, 3} stimmen befriedigend mit den berechneten Z_p -Funktionen überein, ausgenommen wiederum der Anstieg unterhalb $A=130$ und die Ketten 96, 97 bei der Spaltung von Uran-233. Hingegen weichen die Ketten 96 und 97 bei der Spaltung von Plutonium-239 nicht ab.

SEEVERS Massenformel¹³ haben wir ebenfalls benutzt, um nach Regel 2 und 3 Z_p -Funktionen zu berechnen; die Ergebnisse sind aber nicht günstiger. Ob die hier benutzte Massenformel auch mit den Regeln 3 und 4 brauchbare Z_p -Werte voraussagt, kann erst nach der geplanten⁶ Berechnung der Bruchstückmassen entschieden werden.

Herrn Prof. Dr. F. STRASSMANN und Herrn Prof. Dr. J. MATTACH danken wir für ihr Interesse, den Autoren der Massenformel für die Erlaubnis, die noch unveröffentlichten Z_A -Werte benutzen zu dürfen.

¹² I. HALPERN, Ann. Rev. Nucl. Sci. **9**, 321 [1959].

¹³ P. A. SEEGER, Nucl. Phys. **25**, 1 [1961].