

Konstruktion des oben beschriebenen Spektrographen hat sich Herr Hauptwerkmeister F. ZIEGLER, der Leiter der Werkstatt des Physikalischen Institutes, erworben. Einige Arbeiten wurden dankenswerterweise von der Werkstatt des Laboratoriums für Technische Physik der Technischen Hochschule ausgeführt. Die in Abb. 3

wiedergegebene Photographie des Spektrographen wurde freundlicherweise von Herrn WERNER von der Firma Carl Zeiss, Oberkochen, aufgenommen. Schließlich möchten wir auch die Mitarbeit der Herren Dr. H. LIEBL und Dr. G. SAUERMANN im ersten Stadium der Entwicklung des Gerätes anerkennen.

## Massenspektrographische Trennung der energiereichen Ionenstrahlen aus der Spaltung von $^{235}\text{U}$ mit thermischen Neutronen\*

Von EWALD KONECNY, HANS OPOWER und HEINZ EWALD \*\*

Physikalisches Institut der Technischen Hochschule München  
(Z. Naturforschg. 19 a, 200—209 [1964]; eingegangen am 24. Oktober 1963)

Mit dem in der vorhergehenden Arbeit beschriebenen Massenspektrographen können Spaltprodukte, die mit hohen Ionenladungszahlen  $e$  aus einer dünnen  $^{235}\text{U}$ -Schicht herauskommen, nach ihren effektiven Massenzahlen  $M/e$  getrennt werden. Ein auf diese Weise erhaltenes Spektrum der schweren Spaltteilchengruppe wird hinsichtlich der Ionenladungszahlen, Massenzahlen und Intensitäten seiner Linien analysiert. Es wird hierzu mit einem zu erwartenden Spektrum verglichen, dessen  $M/e$ -Werte und Intensitäten unter Berücksichtigung der Selektionseigenschaften des Spektrographen aus bekannten Daten über die Häufigkeitsverteilungen der Ionenladungszahlen, Massenzahlen und Energien der Spaltprodukte berechnet wurden. Die Feinstruktur der Spaltausbeutekurve in der Nachbarschaft der Massenzahl 134 wird untersucht. Außerdem wird gezeigt, daß bei der asymmetrischen Spaltung auf Grund der Energieverteilung der Spaltprodukte und infolge der Selektionseigenschaften des Spektrographen bei geeigneter Wahl der Ablenksysteme Linien jeder häufig vorkommenden Massenzahl der schweren Gruppe gut voneinander getrennt und ziemlich frei von Überlagerungen durch andere Linien erhalten werden können.

In der vorangehenden Veröffentlichung<sup>1</sup> wird über einen Massenspektrographen zur direkten Analyse von Spaltprodukten berichtet, welche annähernd mit ihren hohen kinetischen Anfangsenergien aus einer dünnen  $^{235}\text{U}$ -Schicht herauskommen. Solche Teilchen sind hoch ionisiert. Sie weisen nach LASSEN<sup>2</sup> ein Ionenladungsspektrum auf, welches eine Halbwertsbreite von etwa 6 bis 7 Einheiten besitzt und dessen Häufigkeitsmaximum für die Gruppen der leichten und schweren Spaltprodukte etwa bei den Ionenladungszahlen 20 bzw. 22 liegt. Dementsprechend erhalten wir mit dem Massenspektrographen kein einfaches Massenspektrum der Spaltprodukte, sondern ein solches, das eine Überlagerung von entsprechend vielen und gegeneinander verschobenen Einzelspektren darstellt. Ungefähr Zahlwerte der relativen Häufigkeiten  $h(e)$ , mit denen die verschiedenen Ionenladungszahlen  $e$  in den

Strahlen beider Gruppen im Mittel auftreten, sind in Tab. 1 enthalten. Sie sind aus den Abb. 4 und 12 der Arbeit von LASSEN<sup>2</sup> entnommen und auf  $\sum h(e) = 1,000$  normiert.

Maßgeblich für die Lage einer Linie im Spektrum ist der Quotient aus Masse  $M$  und Ionenladungszahl  $e$  der betreffenden Teilchen. Dies folgt aus den beiden Ablenkungsgleichungen für Teilchen im elektrischen Feld des Toroidkondensators und im homogenen Magnetfeld

$$M m_0 (v^2/a_e) = e e_0 F, \quad (1)$$

$$M m_0 (v^2/a_m) = e e_0 v B, \quad (2)$$

$M$  = Massenzahl,  $m_0$  = atomare Masseneinheit,  $v$  = Geschwindigkeit,  $e$  = Ionenladungszahl,  $e_0$  = Elementarladung,  $F$  = elektrische Feldstärke,  $B$  = magnetische Induktion,  $a_e$  = Krümmungsradius der Mittelbahn im elektrischen Feld,  $a_m$  = Krümmungsradius der Bahnen der betrachteten Teilchen im magnetischen Felde.

\* Auszug aus Teilen der von der Fakultät für Allgemeine Wissenschaften der Technischen Hochschule München genehmigten Dissertationen von EWALD KONECNY („Beiträge zum Bau eines Massenspektrographen (elektrostatischer Teil) zur Untersuchung von primären Spaltprodukten und Analyse der für thermische Spaltung von  $^{235}\text{U}$  gemessenen Spektren“) und von HANS OPOWER („Massenspektrometrische Trennung der energiereichen Teilchen der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  mit thermischen Neutronen“).

\*\* Neue Anschrift: II. Physikalisches Institut der Justus-Liebig-Universität, 63 Gießen, Arndtstraße 2.

<sup>1</sup> H. EWALD, E. KONECNY, H. OPOWER u. H. RÖSLER, Z. Naturforschg. 19 a, 194 [1964]; voranstehend.

<sup>2</sup> N. O. LASSEN, Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat. Fys. Medd. 26, Nr. 5 [1951].



$e$	16	17	18	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28
$h(e)$ (leichte Gruppe)	0,039	0,075	0,112	0,148	0,170	0,148	0,121	0,090	0,063	0,034			
$h(e)$ (schwere Gruppe)	0,020	0,040	0,062	0,083	0,105	0,123	0,134	0,123	0,105	0,083	0,062	0,040	0,020

Tab. 1.

Durch Elimination von  $v$  ergibt sich aus den Gln. (1) und (2)

$$\frac{M}{e} = \frac{a_m^2 B^2 e_0}{a_e F m_0}. \quad (3)$$

Die Teilchen werden nach einer Ablenkung um den Winkel  $\Phi_m = 90^\circ$  an der geraden Austrittsgrenze des Magnetfeldes fokussiert. Der Abstand des Ortes der entstehenden Linie von der Eintrittsstelle der Strahlen in das Magnetfeld beträgt

$$Q = a_m \sqrt{2} = \frac{1}{B} \sqrt{2 a_e F \frac{m_0}{e_0} \cdot \frac{M}{e}}. \quad (4)$$

Bei festgelegten Werten von  $a_e$ ,  $F$  und  $B$  ist dieser Abstand nur noch eine Funktion von  $M/e$ .

Diesen Quotienten bezeichnen wir als effektive Masse oder etwas ungenau auch als effektive Massenzahl. Da wir zunächst mit geringer Auflösung arbeiten (etwa 150), brauchen wir zwischen beiden Ausdrucksweisen nicht zu unterscheiden. Bei einer solchen Auflösung wird eine Linie einer bestimmten effektiven Massenzahl durch die isobaren Teilchen der Zerfallskette der Massenzahl  $M$  hervorgerufen, wie sie durch primäre Spaltakte und nachfolgende Abdampfungen von prompten Neutronen entstehen. Dies gilt unter der Voraussetzung, daß keine Überlagerung durch Teilchen einer anderen Massenzahl stattfindet, die bei einer entsprechend anderen Ionenladungszahl eine nahezu gleiche effektive Massenzahl haben könnten.

Maßgeblich für die Intensitäten der bei den verschiedenen effektiven Massenzahlen auftretenden Linien sind folgende Gegebenheiten:

1. Die Größe des Neutronenfluxes,
2. die Dicke und Ausdehnung der  $^{235}\text{U}$ -Schicht,
3. die Größe des Eintrittsspaltes,
4. die Größe des ausgenutzten Raumwinkels, unter dem die Strahlen, die zu den Linienorten hingelangen, in den Apparat eintreten. Dieser kleine Raumwinkel ist durch die Größen der Blenden zwischen elektrischem Hauptfeld und Magnetfeld bestimmt,
5. die Spaltausbeuten und Energieverteilungen der isobaren Zerfallsreihen bei den verschiedenen Massenzahlen,

6. die Häufigkeitsverteilungen der Ionenladungszahlen,
7. die besonderen Selektionseigenschaften des Massenspektrographen in Abhängigkeit von der an das elektrische Hauptfeld angelegten Ablenkspannung.

In dieser Arbeit soll gezeigt werden, wie sich die Intensitäten der beobachtbaren  $M/e$ -Linien eines Spektrums in Abhängigkeit insbesondere von der Feldstärke  $F$  im Toroidkondensator berechnen lassen. Ein auf diese Weise für einen bestimmten  $F$ -Wert und konstantes Magnetfeld berechnetes Spektrum der Linien der schweren Spaltteilchengruppe wird mit einem unter Anwendung derselben Feldstärke experimentell erhaltenen Spektrum verglichen. Hieraus ergeben sich drei wesentliche Folgerungen. Erstens können den beobachteten Linien mit guter Wahrscheinlichkeit Ladungs- und Massenzahlen zugeordnet werden. Zweitens lassen sich für die gemessenen Bereiche der intensivsten Linien relative Massenhäufigkeiten angeben. Drittens stellt es sich heraus, daß infolge der Selektionseigenschaften des Spektrographen schon bei einer mäßigen Auflösung von etwa 150 viele  $M/e$ -Linien der schweren Spaltteilchengruppe gut voneinander getrennt erscheinen und praktisch frei sind von Überlagerungen durch Linien anderer Massenzahlen. Weniger günstig sind diesbezüglich die Verhältnisse bei den  $M/e$ -Linien der leichten Spaltteilchengruppe.

## I. Ein experimentell erhaltenes Spektrum

In Abb. 1 ist ein experimentell erhaltenes Spektrum wiedergegeben, das mit Vor- und Hauptspannungen von 26 bzw. 226 kV und mit  $B = 0,67 \text{ Vs/m}^2$  bei einer Belichtungszeit von 90 min erhalten wurde. Die Abbildung stellt einen 22 cm langen Ausschnitt aus dem Gesamtspektrum dar. Es waren in der Bildebene des Spektrographen drei Kernspurplatten von je 7,5 cm Länge nebeneinander angebracht. Ihr mittlerer Abstand von der Eintrittsstelle der Strahlen in das Magnetfeld betrug etwa 140 cm. An den Stellen, an denen die Platten aneinander grenzten, ergaben sich Lücken im Spek-

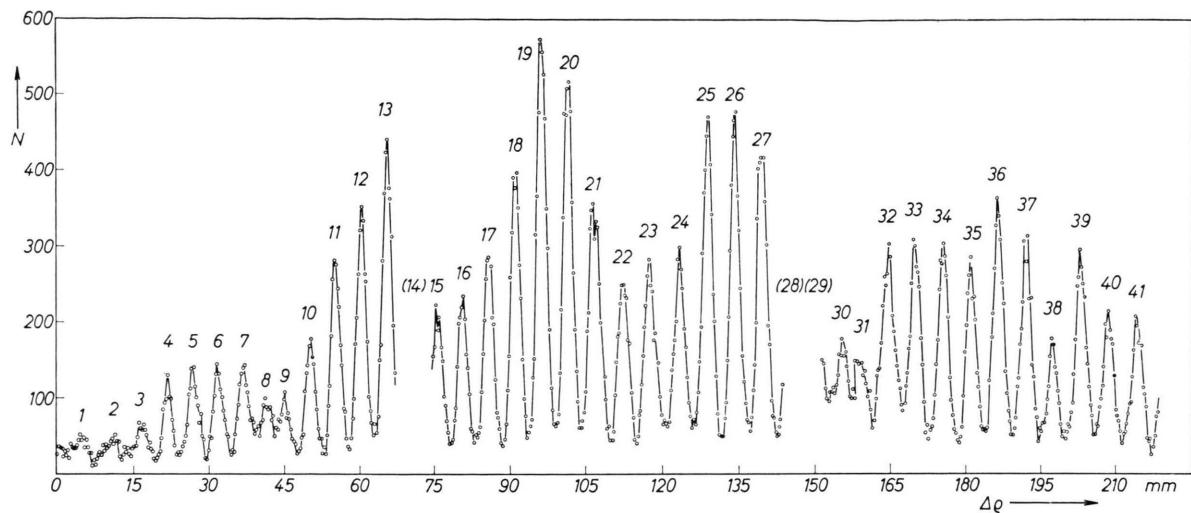


Abb. 1. Gemessenes Spektrum (Ein Meßpunkt gibt die Anzahl der Spuren auf einem 0,1 mm breiten Streifen der Platte).

trum, weil an den Rändern die Emulsion teilweise beschädigt war. Wir sehen in dieser Abbildung nahezu äquidistante Linien. Einige der intensitätsarmen Linien scheinen eine verwaschene Struktur zu besitzen. Das deutet darauf hin, daß sich hier Linien mit eng benachbarten effektiven Massenzahlen mit vergleichbaren Häufigkeiten überlagern. Die Intensitäten der Linien zeigen im Bereich des wiedergegebenen Spektrums eine charakteristische Periodizität. Wir haben die Linien mit den Nummern 1 bis 41 versehen.

## II. Berechnung der zu erwartenden Linienintensitäten

Die Intensitäten dieses Spektrums wollen wir jetzt näherungsweise rechnerisch ermitteln. In der vorangegangenen Arbeit<sup>1</sup> wurde die Anzahl der Teilchen angegeben, die durch den Eintrittsspalt unter dem ausnutzbaren Raumwinkel-Anteil von  $5 \cdot 10^{-6}$  in den Spektrographen eintreten. Es ergab sich hierfür eine Spaltteilchenrate von  $12\,000 \text{ s}^{-1}$ . Wir wollen diese Rate mit  $2R$  bezeichnen und tragen hierbei durch den Faktor 2 der Tatsache Rechnung, daß sich diese Anzahl zu gleichen Teilen aus Ionen der leichten und schweren Spaltteilchengruppe zusammensetzt. Diese Spaltteilchenrate ist ermittelt worden unter ungefährer Berücksichtigung der unter den Punkten 1 bis 4 der obigen Zusammenstellung aufgeführten Gegebenheiten unserer Versuchsanordnung. Wir können uns mit einer ungefähren Angabe begnügen, da es

uns im folgenden hauptsächlich auf die Verhältnisse und nicht so sehr auf die absoluten Werte der Linienintensitäten ankommt.

Die Anzahl der sekundlich unter dem ausnutzbaren Raumwinkel in den Spektrographen eintretenden Ionen der leichten oder schweren Spaltteilchengruppe, welche eine bestimmte Ladungszahl  $e$  haben, ist

$$R(e) = R h(e), \quad (5)$$

wobei die jeweiligen Zahlwerte von  $h(e)$  aus Tab. 1 zu entnehmen sind. So finden wir z. B., daß in unserem Falle pro Sekunde etwa 740 Teilchen der schweren Gruppe mit der Ladungszahl  $e = 23$  in den Apparat eintreten.

Damit Teilchen einer bestimmten Ionenladungszahl  $e$  bei vorgegebener Feldstärke  $F$  im Toroidkondensator darin gerade auf der kreisförmigen Mittelbahn vom Radius  $a_e = 234 \text{ cm}$  abgelenkt werden können, müssen sie nach Gl. (1) die kinetische Energie

$$E(e, F) = \frac{1}{2} a_e e e_0 F \quad (6)$$

besitzen. Bei der Aufnahme des Spektrums der Abb. 1 betrug die Feldstärke am Ort der Mittelbahn  $F = 28,3 \text{ kV/cm}$ . Dieser Feldstärke entspricht z. B. bei Ionen der Ladungszahl 23 nach Gl. (6) eine kinetische Energie von  $E(e, F) = 76,2 \text{ MeV}$ . Es sei hier bemerkt, daß die zwischen dem Kondensator und dem Magnetfeld befindlichen Blenden den Durchtritt der Strahlen mit einer Energiebreite von etwa 1,3% gestatten. Das ist z. B. mit  $E(e, F) = 76,2 \text{ MeV}$  eine Breite von etwa 1 MeV. Da für das rech-

nerisch ermittelte Spektrum, wie weiter unten ausgeführt wird, Daten aus Laufzeitmessungen verwendet werden, die sich auf die Verhältnisse vor den Abdampfungen von prompten Neutronen beziehen, während bei den Teilchen, die den Massenspektrographen durchlaufen, die Neutronenabdampfungen schon stattgefunden haben, muß bei der Anwendung der Daten entsprechend korrigiert werden.

Teilchen, die den Massenspektrographen mit der Massenzahl  $M$  durchlaufen, müssen bei ihrer Entstehung als primäre Spaltprodukte im Innern der dünnen Uranschicht vor der Abdampfung von  $\nu(M)$  prompten Neutronen<sup>3</sup> die Massen

$$M_i = M + \nu(M) \quad (7)$$

gehabt haben, wobei für den Index  $i$  die Buchstaben L oder S zu setzen sind, je nachdem ob  $M$  der leichten oder schweren Spaltteilchengruppe angehört. Für den im Spektrum der Abb. 1 erfaßten Massenzahlbereich von 125 bis 145 können wir näherungsweise den Mittelwert  $\nu(M) = 0,8$  in Ansatz bringen. Es gilt

$$M_L + M_S = 236. \quad (8)$$

Wenn diese Teilchen etwa mit der Energie  $E(e, F)$  in den Kondensator eintreten sollen, müssen sie bei ihrer Entstehung im Mittel die etwas höhere Energie

$$E_i(e, F) = E(e, F) + \Delta E_v + \Delta E_b \quad (9)$$

(i = L bzw. S)

gehabt haben.  $\Delta E_v$  berücksichtigt den kleinen Verlust an kinetischer Energie, den die Teilchen bei der Abdampfung der prompten Neutronen erleiden. Für den Massenzahlbereich 125 bis 145 und  $\nu(M) = 0,8$  ist  $\Delta E_v$  unter Annahme einer isotropen Neutronenabdampfung im Mittel etwa gleich 0,4 MeV.  $\Delta E_b$  berücksichtigt den Energieverlust, den die Teilchen im Mittel durch Abbremsung auf den Wegen von ihren Entstehungsorten bis zur Oberfläche der dünnen Schicht erfahren. Die Dicke der Uranschicht beträgt etwa 300  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Die Richtung der zur Verwendung gelangenden Strahlen bildet mit der Normalen zur Schicht einen Winkel von etwa  $30^\circ$ . Damit ergibt sich unter Verwendung von Meßergebnissen von FULMER<sup>4</sup> ein mittlerer Energieverlust der Teilchen in der Schicht von etwa 3,7%. Das sind in unserem Beispiel mit  $e = 23$  und  $E(e, F) = 76,2$  MeV etwa  $\Delta E_b = 2,9$  MeV. Damit resultiert

$$E_S(e, F) = (79,5 \pm 0,5) \text{ MeV},$$

wobei die angegebenen Grenzen der vom Apparat ausgesonderten Energiebreite entsprechen.

Nunmehr kann man aus einem Schichtliniendiagramm der Energieverteilung der Produkte der thermischen Spaltung von  $^{235}\text{U}$  die Verteilung der Spaltprodukte der Energie  $E_i(e, F)$  auf die verschiedenen Massenzahlen  $M_i$  entnehmen. Wir bedienen uns hierzu des von MILTON und FRASER<sup>5</sup> angegebenen Diagrammes. Es ist aus Laufzeitmessungen erhalten und gibt die Verteilung als Funktion der Massenzahlen  $M_S$  der schweren Spaltprodukte und der gesamten kinetischen Energien  $E_0 = E_L + E_S$  der Spaltprozesse. Zur bequemeren Anwendung haben wir es auf die Ordinaten  $E_L$  bzw.  $E_S$  der kinetischen Energien der primären leichten und schweren Spaltprodukte transformiert, mit  $M_L$  bzw.  $M_S$  als Abszissen (Abb. 2 und 3). Die Zahlenangaben an den Schichtlinien dieser Diagramme beziehen sich auf eine Gesamtzahl von  $10^5$  Spaltungen, auf Massenzahlintervalle von  $\Delta M_i = 1$  und auf Energieintervalle von der Größe  $\Delta E_i = 2,5$  MeV. Die Häufigkeitswerte, die wir für Teilchen der Massen  $M_i$  und der anfänglichen Energien  $E_i(e, F)$  diesen Diagrammen ent-

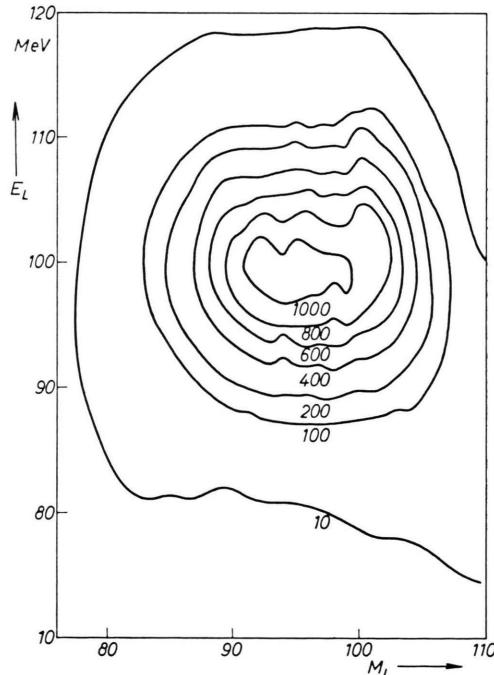


Abb. 2. Schichtliniendiagramm für die leichten Gruppe bei  $^{235}\text{U}$ , nach MILTON und FRASER.

<sup>3</sup> J. TERRELL, Phys. Rev. **127**, 880 [1962].

<sup>4</sup> C. B. FULMER, Phys. Rev. **108**, 1113 [1957].

<sup>5</sup> J. C. D. MILTON u. J. S. FRASER, Phys. Rev., Letters **7**, 67 [1961]; Canad. J. Phys. **40**, 1926 [1962].

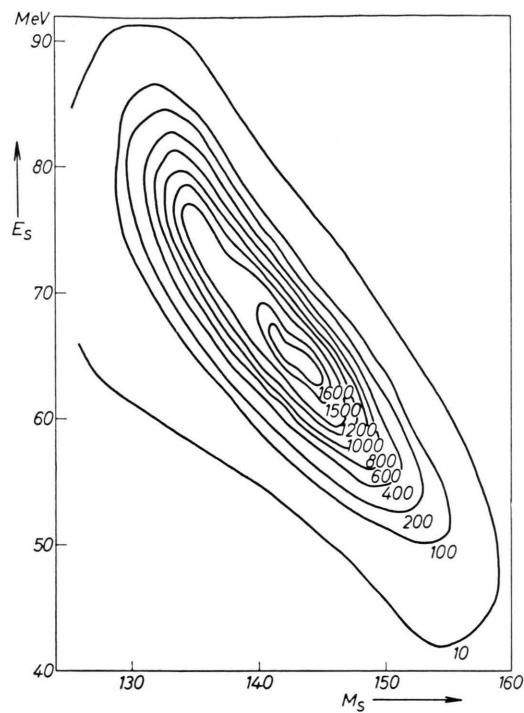


Abb. 3. Schichtliniendiagramm für die schwere Gruppe bei  $^{235}\text{U}$ , nach MILTON und FRASER.

nehmen, sollen mit  $H'(M_i, E_i)$  bezeichnet werden. Aus diesen Häufigkeitswerten erhält man die Anzahl  $H(M, e, F)$  der sekundlich am Ort der Linie der effektiven Massenzahl  $M/e$  eintreffenden Teilchen der Masse  $M$  und Ionenladungszahl  $e$  mittels der Beziehung

$$H(M, e, F) = \frac{R h(e)}{10^5} \frac{0,013 E(e, F)}{2,5} \cdot H'(M_i, E_i). \quad (10)$$

Der Faktor  $R h(e)/10^5$  berücksichtigt, daß pro Sekunde eine Anzahl von  $R h(e)$  Spaltteilchen der

Ionenladungszahl  $e$  in den ausnutzbaren Raumwinkel des Spektrographen eintreten, während die Zahlen an den Schichtlinien der Abb. 2 und 3 sich auf eine Gesamtzahl von  $10^5$  Spaltprozessen beziehen. Der Faktor  $0,013 E(e, F)/2,5$  ist dadurch bedingt, daß die Energiebreite der durch die Blenden des Apparates hindurchgelassenen Teilchen  $0,013 E(e, F)$  beträgt, während sich die Häufigkeiten  $H'(M_i, E_i)$  der Schichtliniendiagramme auf Energieintervalle von der Größe  $\Delta E_i = 2,5 \text{ MeV}$  beziehen. Um die je nach ihren Entstehungsorten unterschiedliche Abbremsung der Teilchen in der Uranschicht noch besser zu berücksichtigen, kann man sich die Schicht in drei Teilschichten gleicher Dicke unterteilt denken. Man hat dann in Gl. (10) die Größen  $H'(M_i, E_i)$  durch die Ausdrücke  $\frac{1}{3} \sum_{j=1}^3 H'(M_i, E_{ij})$  zu ersetzen.

Hierbei bedeutet

$$E_{ij} = E(e, F) + \Delta E_r + \Delta E_{bj}. \quad (11)$$

$\Delta E_{bj}$  ist der Energieverlust, den die aus den mit  $j = 1, 2$  und  $3$  indizierten Teilschichten entstammenden Teilchen im Mittel bis zum Austritt aus der Oberfläche der Schicht erleiden. Für Teilchen z. B. der Ladungszahl  $e = 23$  und  $F = 28,3 \text{ keV}$  ist

$$\Delta E_{bj} = 1,0; 2,9 \text{ bzw. } 4,8 \text{ MeV}$$

und  $E_{ij} = 77,6; 79,5 \text{ bzw. } 81,4 \text{ MeV}$ .

Die Zahlwerte von  $H'(M_i, E_{ij})$  können wiederum den Abb. 2 bzw. 3 entnommen werden.

Die auf diese Weise für  $R = 6000 \text{ s}^{-1}$  und  $F = 28,3 \text{ kV/cm}$  ermittelten Raten der zu den Linienorten gelangenden Ionen der schweren Spaltteilchengruppe der Massen  $M$  und Ladungszahlen  $e$  sind in Abb. 4 als Funktion ihrer effektiven Massenzahlen  $M/e$  (obere Skala) graphisch zu einem be-

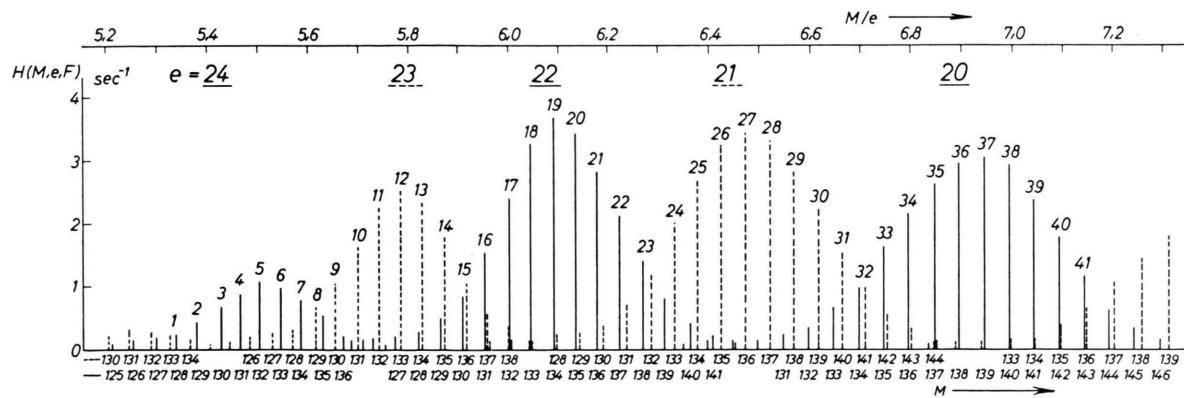


Abb. 4. Berechnetes  $M/e$ -Spektrum.

rechneten Spektrum zusammengestellt. Dabei sind die sich teilweise überlappenden Gruppen von Linien mit aufeinanderfolgenden Ionenladungszahlen, d. h. also die Liniengruppen der Einzelspektren (siehe S. 200), abwechselnd ausgezogen und gestrichelt gezeichnet. Dies soll eine bessere Übersicht ermöglichen. Unten sind in Abb. 4 in zwei Reihen die Massenzahlen der Linien angegeben. Die obere dieser Reihen gehört zu den gestrichelten, die untere zu den ausgezogenen Linien.

Dieses errechnete Spektrum zeigt in dem Verlauf der Intensitäten der Linien eine ähnliche Periodizität wie das experimentell erhaltene (Abb. 1). Die zu bestimmten Ionenladungszahlen gehörigen Liniengruppen sind auf relativ kleine Bereiche der effektiven Massenzahlen beschränkt, so daß nur die Linien geringerer Intensitäten eine erhebliche Überlagerung durch Linien der nächstbenachbarten Ionenladungszahlen erfahren. Die intensivsten Linien des Spektrums können also schon bei einer geringen Auflösung von etwa 150 gut voneinander getrennt erhalten werden.

Eine völlige Übereinstimmung des gerechneten mit dem gemessenen Spektrum kann nicht erwartet werden, da ja die gemessene Verteilung der Massen und in geringerem Maße auch die ihrer Energien wesentlich durch die Massenabhängigkeit der Neutronenabdampfung beeinflußt wird. Bei der Berechnung des Spektrums haben wir dagegen als Näherung für die Anzahl der von allen schweren Spaltprodukten abgegebenen prompten Neutronen den Mittelwert 0,8 eingesetzt. Weitere Unterschiede mögen darauf zurückzuführen sein, daß wir bei der Berechnung die von LASSEN angegebenen Häufigkeiten der Ladungszustände verwenden, die nur über alle Massen und Energien der leichten bzw. schweren Gruppe gemittelte Werte darstellen. In Wirklichkeit sind diese Häufigkeiten etwas abhängig von diesen Größen.

### III. Zuordnung von Ladungs- und Massenzahlen zu den Linien des gemessenen Spektrums

Die Numerierung der Linien des berechneten Spektrums von Abb. 4 entspricht der des gemessenen Spektrums von Abb. 1 und legt damit auch dessen Linien nach Ladungs- und Massenzahlen fest. Diese Zuordnung wurde auf folgende Weise gefunden. Die  $M/e$ -Werte der gemessenen Linien lassen sich mit Hilfe von Gl. (3) aus den Feldstärken und

den Abständen  $\varrho = a_m \sqrt{2}$ , die die Linien bei der Aufnahme des Spektrums von der Eintrittsstelle der Strahlen in das Magnetfeld gehabt haben, bestimmen. Zum Beispiel betrug dieser Abstand für die intensivste Linie 19 von Abb. 1

$$\varrho = (139,2 \pm 0,5) \text{ cm.}$$

Mit  $F = 28,3 \text{ kV/cm}$  und  $B = 0,67 \text{ Vs/m}^2$  folgt für diese Linie  $M/e = 6,24 \pm 0,30$ . Der relativ große Fehler dieses Zahlwertes geht auf die Unsicherheiten in den Angaben der Feldstärken und der effektiven Ablenkradien, insbesondere auch im Hinblick auf die vorhandenen Streufelder, zurück.

Die intensivste Linie des gemessenen Spektrums muß nun sicherlich durch eine der am häufigsten vorkommenden Massen der schweren Spaltteilchengruppe hervorgerufen sein ( $130 \leq M \leq 145$ ). Damit läßt sich die Ladungszahl  $e$ , die zu der als Beispiel angeführten Linie 19 der Abb. 1 gehört, auf den Bereich der Zahlen 20 bis 24 eingrenzen.

Die Ladungszahlen der Linien des gemessenen Spektrums lassen sich aber auch ohne Verwendung der recht ungenau bestimmten Zahlwerte der Feldstärken und ohne Kenntnis der Absolutwerte ihrer Massenzahlen auf folgende Weise genauer ermitteln. Aus Abb. 4 ersehen wir, daß im Bereich der Ionenladungszahlen 24 bis 21 jede sechste intensive Linie die gleiche Massenzahl hat, bei einer jeweils um 1 verschiedenen Ionenladungszahl. Zwei eng benachbarte Linien etwa vergleichbarer Intensitäten, die von unserem Apparat zur Zeit noch nicht aufgelöst werden können, werden dabei als eine einzige gezählt (z.B. Nr. 15 in Abb. 4,  $M = 130$  und  $M = 136$ ). Im Bereich der Ionenladungszahlen 21 bis 19 kommt jeder siebenten Linie die gleiche Massenzahl zu.

Dementsprechend fassen wir die gemessenen Linien der Abb. 1 versuchsweise zu Paaren a, b zusammen, von denen wir annehmen, daß sie gleiche Massenzahlen und um 1 verschiedene Ionenladungszahlen haben ( $M_a = M_b$ ,  $e_b = e_a - 1$ ). Für die Ladungszahlen und die Orte solcher Linien gilt nach Gl. (4) die Beziehung

$$\frac{e_b - e_a}{e_a} = \frac{\varrho_b^{-2} - \varrho_a^{-2}}{\varrho_a^{-2}}. \quad (12)$$

Daraus folgt mit  $\Delta \varrho = \varrho_b - \varrho_a$  nach einer Reihenentwicklung

$$e_a = \frac{\varrho_a}{2 \Delta \varrho} \left( 1 + \frac{3}{2} \frac{\Delta \varrho}{\varrho_a} + \dots \right). \quad (13)$$

Unter der Voraussetzung, daß wir die richtigen Linien der Abb. 1 zu Paaren zusammenfassen, las-

sen sich ihre Ladungszahlen mit Hilfe dieser Gleichung durch Bestimmung der Linienorte  $q_a$  und der Linienabstände  $\Delta q$  auf etwa 0,25 Einheiten genau ermitteln. Die  $\Delta q$ -Werte gehen mit einer Genauigkeit von etwa  $\pm 0,2$  mm aus Abb. 1 hervor. Die  $q_a$ -Werte können dagegen nur mit einer Genauigkeit von etwa  $\pm 5$  mm angegeben werden. Das hat seine Ursache in dem großen Polschuhabstand des Magneten und dem dadurch an der Eintrittsstelle der Strahlen bedingten beträchtlichen Streufeld. Obwohl eine Streufeldblende vorhanden ist, läßt sich die Lage der effektiven Polschuhgrenze deshalb dort nur auf einige Millimeter genau angeben.

Die Linien 19 und 25 der Abb. 1 stellen z. B. ein solches Paar von Linien a und b mit gleicher Massenzahl und mit um 1 verschiedenen Ladungszahlen dar. Mit den Meßwerten  $q_a = (1392 \pm 5)$  mm und  $\Delta q = (33,15 \pm 0,20)$  mm ergibt sich nach Gl. (13) für die erstgenannte dieser Linien die Ladungszahl  $e_a = 21,75 \pm 0,25$ . Dieses Ergebnis ist mit unserer obigen Feststellung verträglich, daß die Ladungszahl der Linie 19 im Bereich der Zahlen 20 bis 24 liegen muß. Wenn wir dagegen versuchsweise die Linie 19 mit einer der Linien 24 oder 26 kombinieren, ergeben sich  $e_a$ -Werte für die Linie 19, die eindeutig außerhalb dieses Bereiches liegen. Die Linien 19 und 25 haben also die gleiche Massenzahl.

Auf diese Weise wurden für insgesamt 15 Paare von Linien a und b, die in Spalte 1 von Tab. 2 aufge-

führt sind, und denen jeweils gleiche Massen- und benachbarte Ladungszahlen zukommen, die  $e_a$ -Werte errechnet (Spalte 4). In Spalte 5 der Tabelle sind die ganzzahligen  $e_a$ -Werte enthalten, die sich danach für die Linien a der Kombinationen ergeben. Die Art, in der die Numerierung der Linien der Abb. 4 auf die Linien der Abb. 1 übertragen wurde, ist in Einklang mit diesen Werten. Aus Tab. 2 geht hervor, daß z. B. die Linien 7, 13, 19, 25 und 32 mit Sicherheit auf Teilchen der gleichen Massenzahl zurückgehen, während die zugehörigen Ladungszahlen in dieser Reihenfolge von Linie zu Linie, wie es sein muß, ziemlich genau um je eine Einheit kleiner werden. Bei fehlerhafter Zusammenfassung von Linien zu solchen Reihen mit angenommener Gleichheit der Massenzahlen würden sich dagegen  $e_a$ -Werte ergeben, welche sich von Linie zu Linie zum Teil um drei bis vier Einheiten unterscheiden.

Im Prinzip müßte sich eine Bestimmung der Massenzahlen der beobachteten Linien nach einer ähnlichen Methode durchführen lassen, wie sie hier für die Ladungszahlen verwendet wurde. Es müßten dazu Linien mit gleichen Ladungs- und verschiedenen Massenzahlen herangezogen werden. Zur hinreichenden Festlegung der Massen wäre allerdings bei den Bestimmungen der relativen Linienabstände  $\Delta q/q$  eine erheblich größere Genauigkeit erforderlich, als sie bei unseren Messungen bisher zu erreichen war. Immerhin kann so der Massenzahlbereich, in dem eine beobachtete Linie liegen kann, bis auf einige wenige Einheiten eingeschränkt werden. So läßt sich z. B. aussagen, daß den Linien 7, 13, 19 und 25 von Abb. 1 eine Massenzahl im Bereich der Zahlen 132 bis 136 zuzuordnen ist.

Nach dem berechneten Spektrum der Abb. 4 sollte man nicht erwarten, daß Teilchen ein und derselben Massenzahl in vier Perioden benachbarter Ladungszahlen die stärksten oder annähernd die stärksten Linien bilden. Für die gemessenen Linien 7, 13, 19 und 25 der Abb. 1 ist das jedoch der Fall. Dies ist nur verständlich, wenn man annimmt, daß die Teilchen dieser Massenzahl im Unterschied zu den Ergebnissen der Laufzeitmessungen mit beträchtlich größerer Ausbeute in den Spektrographen eintreten als diejenigen benachbarter Massenzahlen. Da nach radiochemischen und massenspektrometrischen Messungen<sup>6</sup>, die genauso wie die unserigen die Massen-

Linie	$q_a$ (mm)	$\Delta q$ (mm)	$e_a$ nach Gl. (13)	in den Abb. 1 u. 4 zuge- ordnetes $e_a$
a	b			
4	10	1318	28,35	23,99
5	11	1323	28,5	23,96
6	12	1327	28,8	23,79
7	13	1333	28,65	24,01
10	16	1346	30,6	22,74
11	17	1351	30,75	22,72
12	18	1356	30,6	22,91
13	19	1361	30,6	22,99
18	24	1387	32,7	21,96
19	25	1392	33,15	21,75
20	26	1398	32,9	22,00
21	27	1402	33	21,99
25	32	1425	35,35	20,91
26	33	1431	35,25	21,05
27	34	1435	35,5	20,96

Tab. 2. Bestimmung der Ionenladungszahlen aus den Linienorten und -abständen.

<sup>6</sup> S. KATCOFF in A Review of Nuclear Fission, Part I: Fission Phenomena at Low Energy von E. K. HYDE, UCRL-Report

9036, 1960, S. 131. — W. H. WALKER, AECL-Report Nr. 1054 [1960].

Verteilung nach der Emission der prompten Neutronen ergeben, die Ausbeute bei der Massenzahl 134 deutlich überhöht ist, haben wir den Linien 7, 13, 19 und 25 der Abb. 1 diese Massenzahl zugeschrieben. Damit sind auch die Massenzahlen aller übrigen beobachteten Linien festgelegt.

#### IV. Die Ableitung von Spaltausbeuten aus den beobachteten Linienintensitäten

Unter der Annahme, daß die vorgenommene Zuordnung der Massenzahlen zu den Linien der Abb. 1 zutreffend ist, wurden die Intensitätsverhältnisse der Linien dieser Abbildung genauer mit denen der entsprechenden Linien des berechneten Spektrums der Abb. 4 verglichen. Es wurden dazu nur die intensivsten Linien verwendet, welche, wie aus Abb. 4 hervorgeht, keine oder nur geringere Überlagerung durch Linien anderer Massenzahlen aufweisen. Von den gemessenen Intensitäten der Abb. 1 wurden der vorhandene Untergrund und eventuell kleinere überlagerte Intensitäten in dem Maße, in dem sie nach Abb. 4 zu erwarten sind, abgezogen. Dann wurden innerhalb jeder Gruppe von Linien mit gleichen Ionenladungszahlen die Verhältnisse  $h_{k+1}/h_k$  der korrigierten Intensitäten von Linien benachbarter Massenzahlen  $k+1$  und  $k$  bestimmt und durch die entsprechenden Verhältnisse  $H_{k+1}/H_k$  des berechneten Spektrums der Abb. 4 dividiert. Diese Quotienten wollen wir mit  $V_k$  bezeichnen. Die Intensitätsverhältnisse von Linien, die verschiedenen Ionenladungszahlen angehören, wurden dabei nicht verwendet, um die Unsicherheiten unserer Kenntnisse über die Häufigkeitsverteilung der Ladungszahlen zu vermeiden. Insbesondere hat dann eine Massenabhängigkeit der häufigsten Ionenladung, wie sie schon in der Theorie von BOHR und LINDHARD<sup>7</sup> vorausgesagt wird, kaum einen Einfluß. Die Linien, die zu einer Liniengruppe mit gleicher Ionenladung gehören, werden von Teilchen gleicher Energie gebildet. Bei konstanter Energie ist aber eine systematische Abhängigkeit der Häufigkeit einer bestimmten Ionenladung allein von der Masse der Ionen

nach BOHR und LINDHARD äußerst gering (proportional zu  $M^{-1/6}$ ). Abweichungen hiervon könnten nur im Bereich des Abschlusses einer Elektronenschale auftreten. Die einzige hier in Frage kommende Elektronenzahl von Spaltprodukt-Ionen ist 36. Massen und Ionenladungen, bei denen eine solche Zahl von Elektronen resultiert, liegen bei den hier betrachteten Fällen aber ohnehin am Rande (Massenzahlen über 140 mit Kernladungszahlen der primären Spaltprodukte um 55 und mehr bei kleinen Ionenladungszahlen von 20 und darunter). Eine solche rein massenabhängige Unstetigkeit in der Häufigkeitsverteilung der Ionenladungen würde außerdem weitgehend dadurch abgeschwächt, daß zu jeder Masse primär mehrere Isobare verschiedener Kernladungszahl mit etwa vergleichbaren Häufigkeiten auftreten.

Soweit die gleichen  $V_k$  im gesamten Spektrum mehrfach vorkamen und bestimbar waren, wurden Mittelwerte der gefundenen Zahlwerte gebildet. Durch schrittweise Multiplikation aufeinanderfolgender  $V_k$  ergaben sich für den Massenzahlbereich 131 bis 139 Relativzahlen  $A_k$ , die angeben, inwieweit die gemessenen Linienintensitäten der Abb. 1 von den errechneten der Abb. 4 abweichen. Diese Relativzahlen wurden willkürlich so normiert, daß sich für die Massenzahl 138 der Wert  $A_{138} = 1,00$  ergibt. Aus Tab. 3, in der die erhaltenen Zahlwerte zusammengestellt sind, ist ersichtlich, daß  $A_{134}$  am größten ist.

Wenn wir die  $A_k$  mit den Zahlwerten für die relativen Spaltausbeuten bei den gleichen Massenzahlen  $k$  multiplizieren, welche genauso wie die Berechnungsunterlagen der Abb. 4 den Laufzeitmessungen von MILTON und FRASER<sup>5</sup> entnommen sind, so erhalten wir relative Spaltausbeuten, die den Meßergebnissen von Abb. 1 entsprechen. Die Ergebnisse sind in Abb. 5 im Vergleich zur Ausbeutekurve von MILTON und FRASER und zu den „Bestwerten“ von WALKER<sup>6</sup> graphisch dargestellt. Der Verlauf der Kurve von MILTON und FRASER entspricht der Massen-Verteilung vor der Abdampfung der prompten Neutronen. Die Genauigkeit bei einer

Massenzahl $k$	131	132	133	134	135	136	137	138	139
$A_k$	0,87	0,91	1,00	1,38	1,30	1,04	0,86	1,00	0,86

Tab. 3.

<sup>7</sup> N. BOHR u. J. LINDHARD, Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat. Fys. Medd. **28**, Nr. 7 [1954].

solchen Ermittlung der Feinstruktur der Massenverteilung nach Emission der prompten Neutronen läßt sich beträchtlich steigern, wenn man nicht nur ein, sondern mehrere bei geeignet gewählten Feldstärken aufgenommene Spektren auswertet.

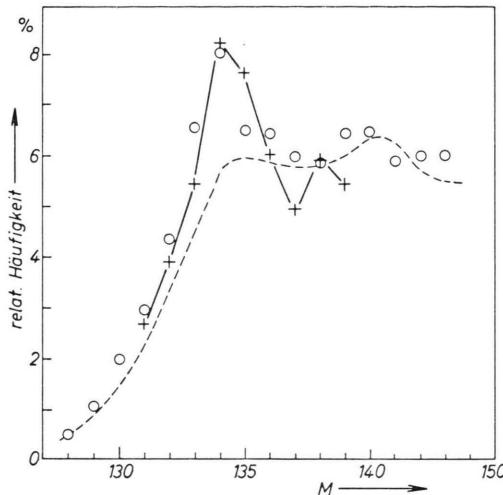


Abb. 5. Häufigkeitsverteilung der Massen. + eigene Messung, o radiochemische Daten nach WALKER, — Laufzeitmessung nach MILTON und FRASER.

## V. Die Möglichkeiten zur überlappungsfreien Trennung der Linien

Wenn man mit dem Massenspektrographen intensive Spektren von der Gruppe der leichten Spaltprodukte aufnehmen will, muß man wegen der höheren Energie dieser Teilchen auch eine entsprechend höhere Ablenkspannung anwenden. Das ist eine Erschwernis, weil das Konstanthalten einer solchen größeren Spannung von mehr als 300 kV gleich auf viel größere Schwierigkeiten stößt. Aber auch bezüglich des benötigten Auflösungsvermögens liegen die Verhältnisse ungünstiger als bei den Spektren der schweren Gruppe. Wenn man sich in entsprechender Weise, wie es oben für die schweren Spaltprodukte demonstriert wurde, auch ein für die leichten Spaltprodukte zu erwartendes Spektrum berechnet, dann stellt man fest, daß es darin keine Linien gibt, die bei einer Auflösung von etwa 150 annähernd frei wären von Überlagerungen durch Linien anderer Massenzahlen. Dieser Tatbestand hat seine Ursache in der sehr unterschiedlichen Lage der Schichtliniendiagramme der Abb. 2 und 3 relativ zu den Koordinatenkreuzen. Die Projektionen der Kammlinien der Häufigkeitsverteilungsberge in die

$M_i$ -,  $E_i$ -Ebenen, die die häufigsten Energien  $\bar{E}_i(M_i)$  der verschiedenen Massen  $M_i$  miteinander verbinden, stellen im Bereich der häufigsten Massen ungefähr Gerade dar, deren Richtungen wir durch die Differentialquotienten  $d\bar{E}_i/dM_i$  angeben können. Für die leichten Spaltprodukte entnehmen wir aus Abb. 2 ungefähr

$$d\bar{E}_L/dM_L = 0 \text{ MeV/Masseneinheit} \quad (14)$$

und für die schweren aus Abb. 3

$$d\bar{E}_S/dM_S = -1,2 \text{ MeV/Masseneinheit}. \quad (15)$$

Dieser große Unterschied im Verhalten der schweren und leichten Gruppe hängt damit zusammen, daß die kinetische Gesamtenergie der Spaltprozesse in allen Fällen, die nicht einer annähernd symmetrischen Spaltung entsprechen, mit ansteigendem Massenverhältnis des schweren zum leichten Teilchen abnimmt. Massen, die einer annähernd symmetrischen Spaltung entsprechen (z. B. in der schweren Gruppe  $M < 129$ ), sollen wegen ihrer relativen Seltenheit hier außer Betracht bleiben.

An Hand von Abb. 6 soll näher erläutert werden, warum man es bei richtiger Wahl der elektrischen Feldstärke immer so einrichten kann, daß eine intensivere Linie der schweren Gruppe bei der Auflösung 150 annähernd frei von Überlappungen durch andere Linien erhalten wird, während das für

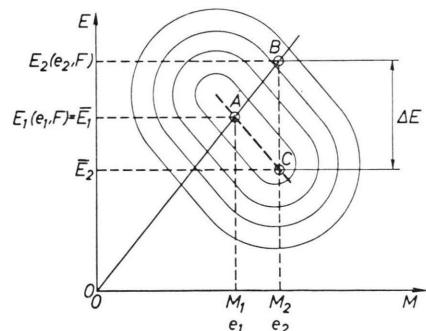


Abb. 6. Zur Berechnung der relativen Intensitäten der sich am gleichen Bildort überlagernden Linien verschiedener Massen (die Gerade AC gibt näherungsweise den Ort der am häufigsten vorkommenden Energien  $E$  der verschiedenen Massen  $M$  an).

die Linien der leichten Gruppe nicht zutrifft. In Abb. 6 ist schematisch ein Schichtliniendiagramm gezeichnet, in das gestrichelt die Kammlinie der häufigsten Energien  $\bar{E}(M)$  eingetragen ist. Die Indizes i, die bisher angezeigt haben, ob es sich um eine Masse der leichten oder schweren Gruppe han-

delt, sind hier der Einfachheit halber weggelassen. Wir betrachten zwei Linien mit verschiedenen Massen- und Ladungszahlen  $M_1, M_2$  bzw.  $e_1, e_2$ , deren effektive Massenzahlen sich aber um weniger als 0,7% voneinander unterscheiden sollen. Die Linien werden sich also bei geringer Auflösung teilweise oder auch ganz überlappen. Dann gilt also in sehr guter Näherung

$$M_1/e_1 = M_2/e_2. \quad (16)$$

Wir wollen annehmen, daß die Feldstärke  $F$  im Toroidkondensator so eingestellt ist, daß die Teilchen der Ladungszahl  $e_1$  (also der Masse  $M_1$ ) mit einer Energie  $E_1(e_1, F)$  durch den Kondensator hindurchgelassen werden, die der häufigsten Energie  $\bar{E}_1$  der Teilchen der Massenzahl  $M_1$  gleichkommt (Punkt A in Abb. 6). Dann werden die Teilchen der Ladungszahl  $e_2$  und der Masse  $M_2 = (e_2/e_1) M_1$  mit der Energie

$$E_2 = (e_2/e_1) E_1 \quad (17)$$

durch den Apparat hindurchgelassen (Punkt B in Abb. 6). Der Unterschied  $\Delta E$  dieser Energie  $E_2$  gegenüber der bei den Teilchen der Masse  $M_2$  am häufigsten vorkommenden Energie  $\bar{E}_2$  (Punkt C in Abb. 6) läßt sich leicht angeben.

Mit  $\Delta e = e_2 - e_1 \ll e_1$  ist dann annähernd

$$\frac{|\Delta E|}{E_2} = \frac{|\Delta e|}{e_1} \left( 1 - \frac{M_1}{E_1} \frac{dE}{dM} \right). \quad (18)$$

Es ergibt sich z. B. für  $e_1 = 22$ ,  $|\Delta e| = 1$ ,  $M_1 = 136$ ,  $\bar{E}_1 = 73$  MeV (siehe Abb. 3),  $d\bar{E}/dM \cong -1,2$  MeV pro Masseneinheit [siehe Gl. (15)] der relative Energieunterschied  $|\Delta E|/\bar{E}_2 \cong 0,14$ . Für  $e_1 = 20$ ,  $|\Delta e| = 1$ ,  $M_1 = 100$ ,  $\bar{E}_1 = 100$  MeV (Abb. 2),  $d\bar{E}/dM = 0$  [Gl. (14)] folgt  $|\Delta E|/\bar{E}_2 = 0,05$ .

Wenn wir von größeren Unterschieden in den Spaltausbeuten der jeweils betrachteten Massen  $M_1$  und  $M_2$  absehen, und wenn wir näherungsweise  $h(e_1) = h(e_2)$  setzen, dann lassen sich aus den Werten  $\Delta E/\bar{E}_2$  die die Linien der Massen  $M_1$  überlagerten relativen Intensitäten der Linien der Massen  $M_2$  angeben. Für die Energieverteilung der Teilchen der Masse  $M_2$  kann mit guter Näherung eine GAUSS-Verteilung um den Energiemittelwert  $\bar{E}_2$  mit etwa 12%

Halbwertsbreite<sup>5, 8, 9</sup> angesetzt werden. Dies führt zu folgender Aussage:

Wenn  $M_1$  und  $M_2$  der schweren Gruppe der Spaltteilchen angehören, dann wird die Intensität der die Linie der Masse  $M_1$  überlagernden Linie der Masse  $M_2$  nur noch etwa 2% der Intensität von  $M_1$  betragen. Wenn es sich jedoch um Linien der leichten Gruppe handelt, dann ist eine Überlagerungsintensität von  $M_2$  in der Größe von 60% der Intensität von  $M_1$  zu erwarten.

Wenn sich die Ladungszahlen  $e_1$  und  $e_2$  um mehr als eine Einheit unterscheiden, sind die Quotienten  $\Delta E/\bar{E}_2$  entsprechend größer. Dann sind die prozentualen Überlagerungen der Linien  $M_1$  durch die Linien  $M_2$  in jedem Falle viel kleiner als in den obigen Beispielen. Die endliche Dicke der dünnen Uranschicht haben wir bei den letzten Betrachtungen vernachlässigt. Eine größere Schichtdicke hat zur Folge, daß die Energieverteilungen aller Massen verbreitert werden, was dann zwangsläufig zu größeren Überlappungen von Linien führt. Es ist deshalb notwendig, daß die Schichtdicken möglichst klein sind. Die bei den hier beschriebenen Messungen verwendete Schicht mit einer effektiven Dicke von 340  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  erfüllt diese Bedingung nicht mehr sehr gut. Deshalb sind auch in Abb. 4 die Überlappungen etwas größer, als dem oben abgeschätzten Wert entspricht.

Gl. (17) gibt die Möglichkeit, die Größe der Beiträge von Teilchen anderer Massen am Ort einer  $M/e$ -Linie experimentell zu prüfen und damit die Feldeinstellung zu finden, bei der Teilchen der gewünschten Masse möglichst überlappungsfrei getrennt erhalten werden. Denn wenn nur Teilchen einer Masse  $M_1$  zu einer Linie beitragen, liefert eine Energiemessung nur eine Energie  $E_1$  (mit einer Breite von etwa 1%); tragen noch Teilchen einer anderen Masse  $M_2 = M_1(e_2/e_1)$  dazu bei, so findet man eine zweite Energie, die sich, da die Ladungswerte  $e$  im Bereich 19 bis 23 liegen, um mindestens 4,5% von  $E_1$  unterscheidet.

Wir danken dem Bundesministerium für Wissenschaftliche Forschung für die Finanzierung, Herrn Prof. Dr. H. MAIER-LEIBNITZ, der Reaktorleitung und Herrn Dr. P. ARMBRUSTER für die wohlwollende Förderung der Arbeit. Herr Dipl.-Phys. A. BÄUML hat uns bei der Herstellung der Abb. 2 und 3 unterstützt.

<sup>5</sup> W. E. STEIN, Phys. Rev. **108**, 94 [1958].

<sup>9</sup> B. L. COHEN, A. F. COHEN u. C. D. COLEY, Phys. Rev. **104**, 1046 [1956].