

Zum Vorkommen von Promethium in der Natur

H. MEIER, E. ZIMMERHACKL, W. ALBRECHT, D. BÖSCHE, W. HECKER, P. MENGE, E. UNGER
und G. ZEITLER

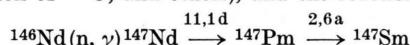
Staatliches Forschungsinstitut für Geochemie, Bamberg

(Z. Naturforsch. 25 a, 1945–1953 [1970]; eingegangen am 19. August 1970)

After a discussion of former publications on the problem of the existence of promethium in nature, studies of our own on this problem are reported. In these researches, 200 kg of gadolinite were separated with regard to Pm by using one- and two-stage cation-exchange separations and nitrilotri-acetic acid for elution and Cu^{2+} as barrier-ion.

The experiments yielded a beta-activity in the mixture-fractions between Sm and Nd. Because of its chemical behaviour and its half-thickness of 4.4 mg/cm^2 that corresponds with a β -maximum energy of 230 keV (^{147}Pm : 223 keV), this beta activity could be identified as ^{147}Pm . For the lanthanide oxides of gadolinite a ^{147}Pm content of $7.3 \cdot 10^{-17\%}$ could be deduced, which agrees well with the value of $4.5 \cdot 10^{-17\%}$ found by Erämetsä in 20 t lanthanide oxides of 6000 t apatite.

The possible origin of the ^{147}Pm -isotope we found in gadolinite is discussed (fallout, actinium anomaly, spontaneous fission of ^{238}U , and others), and the reaction



is supposed to be the cause of the relatively short-lived isotope. The difference between the neutron flux ($36 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{min}$) that was deduced from the saturation activity of ^{147}Pm , and the values of the neutron flux at the earth's surface or crust (0.001 – $0.24 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{min}$) that up to now have been looked upon as probable by other authors, is also mentioned. Moreover, the question of the possible existence of a long-lived isomer of one of the known Pm-isotopes is raised.

I. Einleitung

Die Frage des natürlichen Vorkommens von Promethium wurde vor allem nach 1920 intensiv bearbeitet^{1–8}. Besonders röntgenspektroskopische Befunde schienen dabei auf das Vorkommen des Elements 61 in den nach mühsamen Versuchen erhaltenen Nd/Sm-Zwischenfraktionen hinzuweisen, so daß das Element damals bereits als entdeckt angesehen wurde^{9–15}. Bei eingehender Prüfung konnten

aber diese positiven Ergebnisse nicht bestätigt werden^{16–23}. Da auch systematische röntgenspektroskopische Untersuchungen von aus 100 kg Erden und aus Industrieprodukten gewonnenen Nd/Sm-Fraktionen keinen Hinweis auf das Element 61 ergaben, sahen I. und W. NODDACK^{22, 23} die im periodischen System bei der Ordnungszahl 61 schon von MOSELEY²⁴ diskutierte Lücke deshalb weiterhin als bestehend an. Von I. NODDACK²³

- Sonderdruckanforderung an: Priv.-Doz. Dr. H. Meier,
Staatl. Forschungsinstitut für Geochemie, 8600 Bamberg,
Concordiastr. 28.
 1 P. H. M. BRINTON, P. JAMES u. C. JAMES, J. Amer. Chem. Soc. **43**, 1446 [1921].
 2 A. HADDING, Z. Anorg. Allgem. Chem. **122**, 195 [1922].
 3 R. J. MEYER, G. SCHUMACHER u. A. KOTOWSKI, Naturwiss. **14**, 771 (1926).
 4 U. DEHLINGER, R. GLOCKER u. E. KAUPP, Naturwiss. **14**, 772 [1926].
 5 J. M. CORK, C. JAMES u. H. C. FOGG, Proc. Nat. Akad. Sci. **12**, 696 [1926].
 6 W. NODDACK u. I. TACKE, Chem. Metall. Z. **16**, 985 [1926].
 7 L. F. YNTEMA, J. Amer. Chem. Soc. **46**, 34 [1924].
 8 C. C. KIESS, Bur. Stand. Sci. Paper **18**, 201 [1922].
 9 J. A. HARRIS u. B. S. HOPKINS, J. Amer. Chem. Soc. **48**, 1585 [1926].
 10 J. A. HARRIS, L. F. YNTEMA u. B. S. HOPKINS, J. Amer. Chem. Soc. **48**, 1594 [1926]; Nature, **117**, 792 [1926]; Science, **63**, 575 [1926].
 11 B. S. HOPKINS, J. Franklin Institute **204**, 1 [1927].

- ¹² L. ROLLA u. L. FERNANDES, Z. Anorg. Allgem. Chem. **157**, 371 [1926]; Gazz. Chim. Ital. **56**, 435, 688, 862 [1926].
¹³ L. ROLLA u. L. FERNANDES, Gazz. Chim. Ital. **57**, 704 [1927].
¹⁴ R. BRUNETTI, Gazz. Chim. Ital. **57**, 335 [1927]; Z. Anorg. Chem. **160**, 237 [1927].
¹⁵ W. A. NOYES, Nature, London **119**, 319 [1927].
¹⁶ W. PRANDTL u. A. GRIMM, Z. Anorg. Allgem. Chem. **136**, 283 [1924]; Angew. Chem. **39**, 1333 [1926].
¹⁷ W. PRANDTL, Angew. Chem. **39**, 897 [1926].
¹⁸ J. G. F. DRUCE u. F. H. LORING, Chem. News **131**, 273 [1925].
¹⁹ S. TAKVORIAN, C. R. Acad. Sci. Paris **192**, 1220, 1372 [1931].
²⁰ J. K. MARSH, J. Chem. Soc. **1929**, 2387.
²¹ C. v. AUER VON WELSBACH, Chemiker-Ztg. **50**, 990 [1926].
²² W. NODDACK, Travaux du Congrès Jubilaire Mendeléev II, Ed. Acad. Sci. URSS, Moskau 1937, S. 53.
²³ I. NODDACK, Angew. Chem. **47**, 301 [1934].
²⁴ H. G. J. MOSELEY, Phil. Mag. **26**, 1024 [1913]; **27**, 703 [1914].



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.

wurde dabei als Ursache für die Nichtexistenz angenommen, daß „das Element 61 ein Beta-Strahler von nicht allzu großer Lebensdauer sei“, eine Annahme, die durch kerntheoretische Berechnungen^{25,26} und durch den Nachweis der Instabilität der über die Utranspaltung gewonnenen Nuklide des Promethiums^{27,28,29} — s. Übersicht in³⁰ — bestätigt wurde.

Trotz dieser Feststellungen befaßten wir uns mit dem Problem des Vorkommens von Promethium in der Natur. Einmal interessierte, inwieweit über sekundäre Aufbaureaktionen in erdenhaltigen Proben allgemein mit dem Vorhandensein von Pm gerechnet werden kann. Zum anderen wurde durch das Auffinden von langlebigen Kernisomeren, besonders auch der Isomere des ¹⁷⁶Lu³¹, die Möglichkeit der Existenz eines Pm-Isomeren langer Halbwertszeit diskutierbar. Auch schien eine Klärung der sog. Actinium-Anomalie^{32,33}, nach der für die Aktivität von Nd/Sm-Mischfraktionen Actiniumspuren verantwortlich gemacht werden können, angebracht. Darüber hinaus sollte geprüft werden, ob in größerem Maßstab arbeitende Ionenaustauschertrennanlagen für radiogeochimische Untersuchungen³⁴, d.h. für die Anreicherung radioaktiver Spurenelemente, einsetzbar sind.

Die zur Beantwortung dieser Frage durchgeführten Versuche erhielten in jüngster Zeit durch eine Veröffentlichung von ERÄMETSÄ³⁵, in der über das Auffinden von ¹⁴⁷Pm berichtet wurde, eine zusätzliche Bedeutung. Durch die abweichende Versuchsführung und die anders gewählten Ausgangsmaterialien wird nämlich die Möglichkeit gegeben, die Resultate verschiedener Anreicherungsversuche zu vergleichen und damit das Problem des Vorkom-

mens von Promethium in der Natur unter Zugrundelegung gesicherter und reproduzierter experimenteller Befunde zu diskutieren.

II. Anreicherungsverfahren

1. Grundlagen

Für die Anreicherung der in erdenhaltigen Ausgangsmaterialien vermuteten Promethiumspuren wurde eine mit Komplexbildungsreaktionen kombinierte Ionenaustauschmethode gewählt, deren Anwendbarkeit für die Trennung und Reindarstellung größerer Mengen Seltener Erden durch viele Trennversuche gesichert war. Im Prinzip wirken bei dieser von SPEDDING^{36,37} für die präparative Trennung der Seltenen Erden erstmals eingesetzte Methode, die von W. NODDACK und Mitarbeitern³⁸⁻⁴⁵ unter Zugrundelegung empirisch und theoretisch ermittelnder Trennbedingungen weiterentwickelt wurde, mehrere Effekte bei der Trennung zusammen:

1. Die von La ($Z = 57$) zum Lu ($Z = 71$) mit geringer werdender Basizität (Ionenradius) abnehmende Affinität der Seltenen Erden zum Kationenaustauscher.
2. Die vom La zum Lu zunehmende Stabilität der zwischen den Seltenen Erden und dem Elutionsmittel (Äthylendiamintetraessigsäure (AeDTE) oder Nitritotriessigsäure (NTE) gebildeten Komplexe.
3. Die Möglichkeit einer Vergrößerung der für die Trennung wichtigen Zahl der zwischen den adsorbierten und komplexierten Erdenionen ablaufenden Austauschreaktionen durch Anschaltung einer mit Cu^{2+} (dem sog. Barriere-Ion) beladenen sog. Entwicklersäule, die sich dadurch ergibt, daß in-

²⁵ J. MATTUCH, Z. Physik **91**, 361 [1934].

²⁶ H. JENSEN, Naturwiss. **26**, 381 [1938].

²⁷ C. D. CORYELL u. N. E. BALLOU, Report CC-529 (März 1943).

²⁸ N. E. BALLOU, Report CC-680, S. 22 [1943].

²⁹ J. A. MARINSKY u. L. E. GLENDENIN, Report CC-2829 (Juni 1945); Chem. Eng. News **26**, 2346 [1948].

³⁰ F. WEIGL, Fortschr. Chem. Forsch. **12**, 539 [1969].

³¹ W. HERR u. E. MERZ, Radioisotopes in Scientific Research II (Ed. R. C. Extermann), Pergamon Press, New York 1958, S. 571.

³² M. HAISSINSKY, Radiochim. Acta **7**, 61 [1967].

³³ M. HAISSINSKY, I. GRATOT u. J. BEYDON, J. Inorg. Nucl. Chem. **31**, 341 [1969].

³⁴ H. MEIER, W. ALBRECHT, D. BÖSCHE, W. HECKER, P. MENGE, A. RUCKDESCHEL, E. UNGER, G. ZEITLER u. E. ZIMMERHACKL, Z. Naturforsch. **25a**, 79 [1970].

³⁵ O. ERÄMETSÄ, Acta Polytechnica Scandinavica Chemistry including Metallurgy Series Nr. 37, Helsinki 1965.

³⁶ F. H. SPEDDING, A. F. VOIGT, E. M. GLADROW u. N. R. SLEIGHT, J. Amer. Chem. Soc. **69**, 2777 [1947].

³⁷ F. H. SPEDDING u. A. H. DAANE, The Rare Earths. Wiley, New York 1961.

³⁸ W. NODDACK, Chem. Technik **10**, 586 [1958].

³⁹ W. NODDACK u. G. OERTEL, Z. Elektrochem. Bunsenges. phys. Chem. **62**, 56 [1958].

⁴⁰ W. NODDACK † u. G. OERTEL, Z. anorg. allgem. Chem. **318**, 122 [1962].

⁴¹ E. ZIMMERHACKL, Dissertation, Universität Erlangen 1961.

⁴² W. NODDACK † u. J. WOIDT, Z. Anorg. Allgem. Chem. **323**, 209 [1963].

⁴³ W. NODDACK † u. W. KORNELI, Z. Anorg. Allgem. Chem. **323**, 220 [1963].

⁴⁴ W. NODDACK † u. J. WOIDT, Z. Anorg. Allgem. Chem. **323**, 210 [1963].

⁴⁵ W. ALBRECHT, Diplomarbeit, Universität Erlangen 1961.

folge der hohen Komplexstabilität des Cu(II)-Komplexes die Erdenionen durch Verdrängung der Cu(II)-Ionen wieder am Austauscher (diesmal jedoch an der Entwicklersäule) adsorbiert und vom Komplexbildner in der Reihe der Komplexstabilität eluiert werden.

Eine auf diesen Effekten aufbauende, aus zwei großen Säulen bestehende Anlage, die für Trennungen der Seltenen Erden im 10 kg Maßstab eingesetzt werden kann, führt zu hochkonzentrierten Fraktionen der einzelnen Erden. Nach zwei Durchläufen fallen einzelne schwere Erden bereits mit Reinheitsgraden von mehr als 99% an.^{38,40} Für die Anreicherung einzelner Seltener Erden, wie z.B. Promethium, aus Gemischen ist die mehrmalige einstufige Zweisäulen-Trennung jedoch zu langwierig. Es wurde deshalb eine von NODDACK und WOIDT⁴² entwickelte Zweistufen-Anlage für die Pm-Anreicherung eingesetzt, bei der an die erste, aus zwei großen Säulen bestehende Trennstufe eine zweite Trennstufe mit mehreren kleineren Säulenpaaren angeschaltet ist. Werden von der zweiten Stufe jeweils nur die ersten Austauschersäulen der Reihe nach bis zum Durchbruch mit den von der 1. Stufe kommenden Elutionslösungen beladen und dann über die zweiten Cu-Säulen entwickelt, so ergeben sich bei getrennter Elution der einzelnen Säulenpaare hohe Trenneffekte. Bereits in einem Durchlauf lassen sich dabei nach dem Zweistufen-Verfahren größere Mengen verschiedener Seltener Erden rein gewinnen.

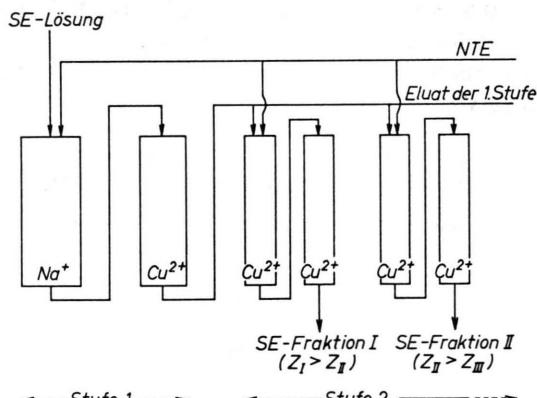


Abb. 1. Schema der Pm-Anreicherungsanlage (Zweistufen-Trennung).

Das Schema der für die Promethium-Anreicherung verwendeten Anlage zeigt Abb. 1. Angemerkt sei, daß sich die Methode von dem für die großtechnische Promethiumgewinnung verwendeten Verfahren^{46,47}, abgesehen von der Wahl eines anderen Barriere-Ions (Zn^{2+} bzw. Y^{3+}), durch die Zweistufigkeit grundsätzlich unterscheidet. Es besteht auch ein wesentlicher Unterschied zum Konzentrationsverfahren von ERÄMETSÄ³⁵, da dieses ohne Barriere-Ion arbeitet.

2. Versuchsdurchführung

Die Zweistufen-Anlage bestand aus zwei Säulen der 1. Stufe (20 bzw. 10 cm Durchmesser; 4 m Länge; Na^+ -bzw. Cu^{2+} -Stadium) und 6 Säulenpaaren (je 6 cm Durchmesser und 2 m Länge bzw. kleiner [s. unter III]) der 2. Stufe. Als Austauscher wurde Lewatit S 100 bzw. Dowex 50 × 8 und als Elutionsmittel eine 2%ige Lösung ($pH = 7,5$) von Trilon A (BASF), dem Trinatriumsalz der Nitrotriessigsäure (NTE), verwendet. Nach Beladung der 1. Säule der 1. Trennstufe mit 1-proz. Erdenchloridlösung erfolgte Elution mit NTE, wobei die am Ende der Cu-Folgesäule ausfließenden Lösungen jeweils bis zum Durchbruch auf die 1. Säulen der Säulenpaare der 2. Trennstufe geleitet wurden. Die nach Elution der Säulenpaare der 2. Stufe erhaltenen Nd/Sm-Fraktionen wurden nach Oxalatfällung, Glühen, röntgen-spektroskopischer Analyse sowie Aktivitätsmessung erneut in HCl gelöst und mit kleineren Ionenaustauscherkolonnen zweistufig bzw. nach Erreichen des Grammbereichs einstufig weiter aufgetrennt.

Als Ausgangsmaterial wurde Gadolinit verwendet, ein Erdenmineral, das neben den als Hauptbestandteil vorliegenden Yttererden etwa 8% Nd + Sm enthält.

III. Ergebnisse

1. Chemische Anreicherung

Der Verlauf der chemischen Anreicherung ist aus dem Schema der Abb. 2 ersichtlich. Die Tabelle 1–3

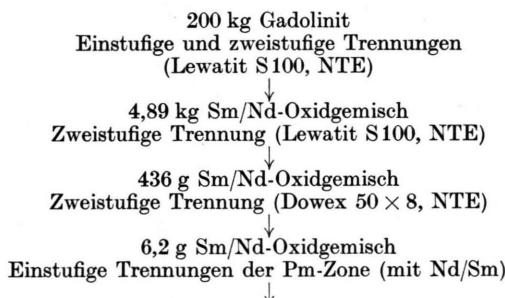


Abb. 2. Schema des Trennverlaufs.

⁴⁶ E. J. WHEELWRIGHT u. F. P. ROBERTS, Report HW-78651 REV (Okt. 1963).

⁴⁷ E. J. WHEELWRIGHT, F. P. ROBERTS, U. L. UPSON, L. J. KIRBY, T. R. MYERS u. H. H. VAN TUYL, Report BNWL-318 (Dez. 1966).

enthalten außerdem Angaben über die Zusammensetzung der letzten Anreicherungsfractionen.

Fraktion	Sm ₂ O ₃ (Mol-%)	Nd ₂ O ₃ (Mol-%)	Sonstiges (Mol-%)	Menge (g)
XI/A	—	—	Y 99	27
XI/B	99	—	—	80
XI/1	99	—	Eu	0,4
XI/2	> 99,9	—	—	4,4
XI/3	> 99,9	—	—	4,2
XI/4	> 99,9	—	—	3,9
XI/5	> 99,9	—	—	4,2
XI/6	99,9	—	—	1,5
XI/7	57,5	42,5	—	4,3
XI/8	1,3	98,7	—	1,9
XI/C	—	> 99,9	—	125

Anmerkung: Fraktion XI/7 + 8 zur weiteren Trennung.

Tab. 1. Sm/Nd-Fractionen der Zweistufen-Trennung von 436 g Sm/Nd-Oxidgemisch. 1. Stufe: Länge 2,5 m (4 m); Durchmesser 10 cm (6 cm); 2. Stufe: Länge 1,1 m; Durchmesser 2,6 cm; Austauscher: Dowex 50 × 8; Elutionsmittel: NTE ($p_{\text{H}} = 7,5$).

Fraktion (XI/7 + 8/)	Sm ₂ O ₃ (Mol-%)	Nd ₂ O ₃ (Mol-%)	Menge (g)	Anmerkung
1	> 99,9	—	0,2	
2	> 99,9	—	0,8	
3	> 99,9	—	0,8	
4	> 99,9	—	0,7	
5	> 99,9	—	0,3	
6	44,5	55,5	0,6	Pm-Fraktion
7	—	> 99,9	0,8	
8	—	> 99,9	0,7	
9	—	> 99,9	0,4	
			5,3	

Anmerkung: Fraktion XI/7 + 8/6 zur weiteren Trennung.

Tab. 2. Sm/Nd-Fraction der Einstufen-Trennung der Fractionen XI/7 + 8 (s. Tab. 1). Säulenlänge: 1,2 m; Durchmesser: 2,4 cm; Austauscher: Dowex 50 × 8; Elutionsmittel: NTE ($p_{\text{H}} = 7,5$).

Fraktion XI/7 + 8/6	Sm ₂ O ₃ (Mol-%)	Nd ₂ O ₃ (Mol-%)	Menge (g)	Anmerkung
6/1	> 99,9	—	0,003	Pm-Fraktion
6/2	> 99,9	—	0,086	
6/3	> 99,9	—	0,042	
6/4	95,6	4,4	0,049	
6/5	12,1	87,9	0,043	
6/6	—	> 99,9	0,101	
6/7	—	> 99,9	0,094	
6/8	—	> 99,9	0,021	

Tab. 3. Sm/Nd-Fraction der Einstufen-Trennung der „Pm-Fraktion XI/7 + 8/6“ (s. Tab. 2). Säulenlänge: 50 cm; Durchmesser 1 cm; Austauscher: Dowex 50 × 8; Elutionsmittel: NTE ($p_{\text{H}} = 7,5$).

2. α - und γ -Aktivität

In Tab. 4 sind die α - und γ -Aktivitätswerte der auf Pm angereicherten Fractionen XI/7 und XI/8 (s. Tab. 1) sowie die α -Zerfallsraten der bei weiterer Konzentrierung erhaltenen Fractionen XI/7 + 8/2-8 (s. Tab. 2) zusammengestellt.

Das Fehlen einer γ -Aktivität in den Fractionen XI/7 und XI/8 zeigt, daß Thorium bzw. Uran und deren Folgeprodukte vollständig abgetrennt sind. Die α -spektrometrische Messung der Fraktion XI/7 (Gerät: Halbleiterdetektor D 18 P 50/200 mit Impulshöhenanalysator SA 40) bestätigt dies. Man erkennt aus dem α -Spektrum (s. Abb. 3), daß die Aktivitätsverteilung erst bei 2,2 MeV einsetzt und dann als Folge der unendlich dicken Schicht des Präparats kontinuierlich zu niedrigen Energien hin verläuft. Im Energiebereich über 5,3 MeV (²¹⁰Po) liegt die Aktivität innerhalb des Leerwertes von $0,5 \pm 0,3$ Imp/Stde. α -Strahler der ²³⁸U-, ²³⁵U- und ²³²Th-Reihe sind somit nicht vorhanden; die Fraktion enthält als α -Strahler nur ¹⁴⁷Sm (α -Energie: 2,23 MeV).

Fraktion	Hinweis auf Trennung s. Tabelle	Menge zur Messung [g]	α -Aktivität [Imp./Stde.]	γ -Aktivität [Imp./Stde.]	Sm ₂ O ₃ (Mol-%)	Nd ₂ O ₃ (Mol-%)
XI/7	1	1	4059 ± 385	-2 ± 64	57,5	42,5
XI/8	1	1	133 ± 19	17 ± 64	1,3	98,7
XI/7 + 8/2	2	0,26	3417 ± 146	—	> 99,9	—
/3	2	0,26	3527 ± 150	—	> 99,9	—
/4	2	0,26	3760 ± 179	—	> 99,9	—
/5	2	0,26	3697 ± 110	—	> 99,9	—
/6	2	0,26	1687 ± 45	—	44,5	55,5
/7	2	0,26	12 ± 5	—	—	> 99,9
/8	2	0,26	1 ± 4	—	—	> 99,9

Anmerkung: Alle Fehlerangaben beziehen sich auf die Standardabweichung bei einer statistischen Sicherheit von 99,7%.

Tab. 4. α - und γ -Aktivität verschiedener Anreicherungsfractionen. α -Messung: Methandurchflußzähler FH 49 B; γ -Messung: FH 488S + SA 40.

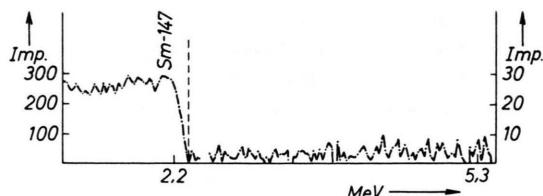


Abb. 3. α -Spektrum des Präparats XI/7 + 8/6 (s. Tab. 2). Gesamtaktivität: 165 ± 5 Imp./Stde. Aufnahmedauer: 66 Stunden.

3. β -Aktivität

Durch die relativ große α -Aktivität des ^{147}Sm wird der Nachweis einer schwachen β -Aktivität in den Sm/Nd-Mischfraktionen sehr erschwert. Plaumessungen lassen nämlich erkennen, daß β -Strahler neben α -Strahlern nur bei einem α/β -Verhältnis $z < 5$ identifiziert werden können⁴⁸. Ohne eine gesonderte Messung des α - und β -Plateaus, die bei geringen Zerfallsraten oft problematisch ist, muß für den Nachweis einer β -Aktivität das α/β -Verhältnis, besonders beim Vorhandensein eines niedrigerenergetischen α -Strahlers, einen Wert $z < 2$ aufweisen. Das heißt, der aus den $(\alpha + \beta)$ - und α -Messungen bestimmte Wert $y = (\alpha + \beta)/\alpha$ deutet erst ab $y > 1,5$, mit größerer Sicherheit etwa ab $y > 2,0$, auf den zusätzlichen Einbau eines β -Strahlers hin. Eventuelle Matrixeffekte (Leerwert β') sind ebenfalls zu berücksichtigen, so daß statt y der Wert $y' = [(\alpha + \beta) - \beta']/\alpha$ zur Diskussion einer β -Aktivität heranzuziehen ist.

In Tab. 5 sind die für den β -Aktivitätsnachweis erforderlichen Meßwerte der für den Pm-Nachweis wichtigen Fraktionen angegeben.

Auf Grund der Ergebnisse der Tab. 5 kann in den Fraktionen XI/8 und XI/7 + 8/6 neben der auf ^{147}Sm zurückzuführenden α -Strahlung eine zusätzliche β -Aktivität angenommen werden. Wegen der Problematik des Auffindens geringer β -Aktivitäten neben hohen α -Aktivitäten wurde zur Vermeidung evtl. Pm-Verluste auch die Fraktion XI/7 weiter verarbeitet.

4. Identifizierung der β -Aktivität

a) Chemische Identifizierung

Die Tatsache, daß eine β -Aktivität gerade in denjenigen Fraktionen angereichert wurde, die infolge der Gleichgewichtskonstanten der Ionenaustausch- und Komplexbildungsreaktionen Pm enthalten sollten, spricht für das Vorhandensein eines betastrahlenden Pm-Isotops in den zwischen Sm und Nd liegenden Fraktionen. Die bei der weiteren Trennung erhaltene Anreicherung der β -Aktivität in den dem Pm entsprechenden Fraktionen (s. Tab. 6 und 7) steht hiermit im Einklang und bestätigt, daß die aus Gadolinit angereicherte β -Aktivität auf Grund des chemischen Verhaltens mit Pm identisch ist. Man erkennt aus diesen Ergebnissen aber auch

Fraktion XI/7 + 8/6	Menge [mg]	β -Akt. [Imp./Stde.]	Anmerkung [%]
3	42,3	43 ± 48	99,9 Sm_2O_3
4	49,3	645 ± 85	Pm-Fraktion
5	43,7	676 ± 88	Pm-Fraktion
6	43	-8 ± 67	99,9 Nd_2O_3

Tab. 6. β -Aktivität der bei Trennung der Nd/Sm-Fraktion XI/7 + 8/6 erhaltenen Fraktionen (s. Tab. 2 und 3). Messung: FH 49 + Folie (3,08 mg/cm²).

Fraktion	α -Aktivität [Imp./Stde.]	$(\alpha + \beta)$ -Akt. [Imp./Stde.]	$y' = \frac{(\alpha + \beta) - 100}{\alpha}$	Zur Trennung s. Tabelle	β -Aktivität Überschuß
XI/7	4059 ± 385	6902 ± 145	1,7	1	
XI/8	133 ± 19	489 ± 57	2,9	1	+
XI/7 + 8/1	1695 ± 61	2575 ± 62	1,5	2	
/2	3417 ± 146	6981 ± 109	2,0	2	
/3	3527 ± 150	5827 ± 107	1,6	2	
/4	3760 ± 179	7167 ± 120	1,9	2	
/5	3697 ± 110	5958 ± 156	1,6	2	
/6	1687 ± 45	4985 ± 68	2,9	2	+

Anmerkung: Als Matrixeffekt wurde der Leerwert von gereinigtem Nd_2O_3 ($\beta' = 100$) eingesetzt.

Tab. 5. α -, $(\alpha + \beta)$ -, und y' -Werte verschiedener Anreicherungsfractionen (Gewichtsangaben in den Tabellen 1, 2 und 4). Messung mit FH 49 B.

^{47a}R. Ross u. J. RÖMER, Isotopenpraxis 3, 197 [1967].

⁴⁸H. MEIER, G. ZEITLER, W. HECKER, W. ALBRECHT, D. BÖSCHE, P. MENGE, E. UNGER u. E. ZIMMERHACKL, (wird gesondert veröffentlicht).

Fraktion XI/7 + 8/6/4 + 5	α -Aktivität [Imp./Std]	β -Aktivität [Imp./Std]
X	0 \pm 2	303 \pm 72
XI	1 \pm 2	1752 \pm 47
XII	-2 \pm 2	1255 \pm 69
XIII	-1 \pm 2	1645 \pm 42
XIV	-1 \pm 3	187 \pm 33

Anmerkung: a) Gesamtgewicht der 5 Fraktionen < 5 mg;
b) Trennung erfolgte hier durch Anionenaustausch nach Ross^{47a}.

Tab. 7. Aktivitäten der bei der Trennung der Fraktion XI/7 + 8/6/4 + 5 (s. Tab. 6) erhaltenen β -aktiven Fraktionen. Messung: FH 49.

gleichzeitig die Einsatzmöglichkeit der in größerem Maßstab arbeitenden Ionenaustauschertrennverfahren für die Anreicherung radioaktiver Spurenelemente.

b) Identifizierung von ^{147}Pm

Aus der mit Aluminium als Absorber gemessenen β -Absorptionskurve der Nd/Sm-Mischfraktion XI/7 + 8/6 ergibt sich eine Halbwertsdicke von 4,4 mg pro cm^2 ; s. Abb. 4. Der Meßwert entspricht einer β -Maximalenergie von 230 keV, die gut mit der für ^{147}Pm in der Literatur angegebenen β -Energie von 223 keV³⁰ übereinstimmt. Eine Vergleichsmessung mit einem ^{147}Pm -Standard, der in eine der Fraktion XI/7 + 8/6 entsprechenden Nd/Sm-Matrix eingebracht worden war, bestätigt dies.

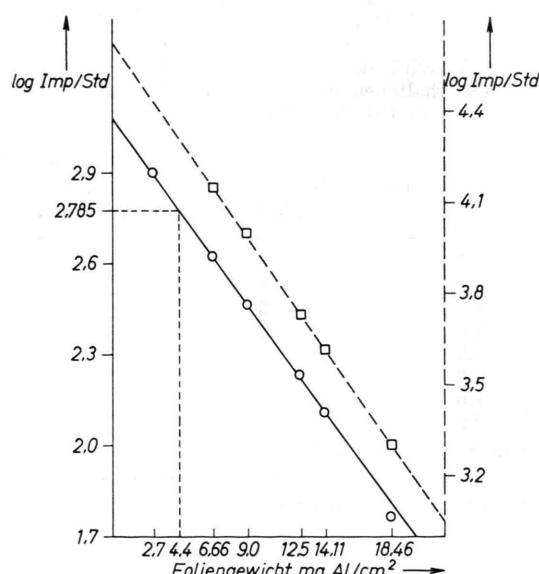


Abb. 4. Absorptionskurven zur Bestimmung der Halbschichtdicke. ○ Präparat XI/7 + 8/6; □ Präparat Pm-Test.

Durch die Übereinstimmung der β -Maximalenergien kann somit der bereits chemisch als Promethiumisotop eingestufte β -Strahler der Gadolinitaufarbeitung mit ^{147}Pm identifiziert werden.

IV. Diskussion

1. Häufigkeit

Die bei der Aufarbeitung von 200 kg Gadolinit gefundene Aktivität des ^{147}Pm liegt bei Berücksichtigung der Geometrie des Zählgerätes und der Selbstabsorption der Proben bei 8000 Zerfällen/Stde. (Präparatedicke 20 mg/cm²). Es wurde somit eine Pm-Gewichtsmenge von $6,6 \cdot 10^{-14}$ g angereichert. Dies entspricht einem Gehalt von $3,3 \cdot 10^{-19}$ g ^{147}Pm pro Gramm des hier aufgearbeiteten Gadolinit. Da der Gadolinit zu 45% aus Seltenern Erden besteht, folgt für die Lanthanidenoxide ein ^{147}Pm -Gehalt von $7,3 \cdot 10^{-17}\%$. Dieser Wert stimmt mit dem von ERÄMETSÄ³⁵ angegebenen ^{147}Pm -Gehalt der Lanthanidenoxide von $4,5 \cdot 10^{-17}\%$ gut überein. Bezieht man den ^{147}Pm -Gehalt auf die Nachbarn des Pm, z.B. Nd, so liegen auch diese Werte in vergleichbaren Größenordnungen: $1,7 \cdot 10^{-15}\%$, bzw. bei ERÄMETSÄ³⁵ $3,1 \cdot 10^{-16}\%$. Es ist hervorzuheben, daß den Gehaltsangaben nach ERÄMETSÄ die Trennung von 20 t Lanthanidenoxiden, die aus 6000 t Apatit angereichert waren, zugrunde lag. Das heißt, die Aufarbeitung verschiedener Ausgangsmaterialien führt zu einer ähnlichen, auf die Seltenen Erden bezogenen Häufigkeit.

2. Mögliche Herkunft des Promethium-147 im Gadolinit

Da ^{147}Pm mit einer Halbwertszeit von 2,62 Jahren³⁰ zerfällt, kommt der Frage der Herkunft dieses Strahlers in den natürlichen Proben Bedeutung zu. Die Diskussion der verschiedenen Möglichkeiten führt zu folgenden Ergebnissen:

a) Künstlicher Fallout: Das bei Kernwaffentests mit den übrigen Spaltprodukten in die Atmosphäre gebrachte ^{147}Pm kann als Ursache des nachgewiesenen ^{147}Pm ausgeschieden werden. Zwar liegen Angaben über relativ hohe ^{147}Pm -Kontaminationen vor⁴⁹⁻⁵², aber die Messungen gerade der

⁴⁹ R. WOOD, J. R. W. KERR u. L. A. RICHARDS, Nature London **208**, 1083 [1965].

⁵⁰ P. K. KURODA, B. D. PALMER, M. ATTREP jr., J. N. BECK, R. GANAPATHY, D. D. SABU u. M. N. RAO, Science **147**, 1284 [1965].

höchsten Werte wurden an Stellen und zu Zeitpunkten ausgeführt, an denen mit einer hohen Verseuchung gerechnet wurde. Außerdem handelte es sich um Meeres- bzw. Regenwasser, die ohnehin höhere Verseuchungen zeigen. Der verwendete Gadolinit dagegen lag in Stücken vor, die weniger zur Kontamination neigen⁵³, zudem nach dem Freilegen gesammelt und stets in geschlossenen Gefäßen aufbewahrt wurden. Einen weiteren wichtigen Hinweis gegen die Annahme, das gefundene ¹⁴⁷Pm stamme aus der allgemeinen Bodenverseuchung durch Fallout, gibt ein Vergleich der Werte von ERÄMETSÄ³⁵ und den hier gefundenen. Im Falle einer Fallout-Verseuchung müßten die gefundenen ¹⁴⁷Pm-Mengen abhängig von der Menge des gesamten aufgearbeiteten Materials und nicht vom Erdenanteil sein. Das trifft aber nicht zu: während die auf die SE-Menge bezogenen ¹⁴⁷Pm-Gehalte übereinstimmen (s. o.), liegt der auf die Gesamtmenge bezogene ¹⁴⁷Pm-Gehalt hier bei $3,3 \cdot 10^{-17}\%$ und der von ERÄMETSÄ³⁵ bei $1,5 \cdot 10^{-19}\%$.

Auch die weiteren Möglichkeiten einer Kontamination wurden eingehend untersucht. Dieser Arbeit kommt nachträglich noch durch einen Einwand⁵⁴ gegen die Schlußfolgerung der Veröffentlichung von ERÄMETSÄ³⁵ besondere Bedeutung zu. Als Hauptursache einer eventuellen Verseuchung könnten ohne Zweifel die zur Trennung notwendigen großen Wassermengen angesehen werden. Das Wasser wurde aber durch eine Fe-Mn Aufbereitung gereinigt. Eine dann parallel zur Erden trennung laufende Ionenaustauscheraufbereitung des Wassers zeigt nach Elution in seiner SE-Fraktion eine ¹⁴⁷Pm-Konzentration von $< 3 \cdot 10^{-16}$ g/100000 l. Das bedeutet, daß von den im Endprodukt enthaltenen $6,6 \cdot 10^{-14}$ g ¹⁴⁷Pm nur maximal $1,5 \cdot 10^{-16}$ g durch das Wasser eingeschleppt worden sein können.

Die verwendeten Chemikalien scheiden ebenfalls als Kontaminationsursache aus, wie Reinheitsprüfungen ergaben. Gegen eine Kontaminierung durch Chemikalien spricht auch, daß ERÄMETSÄ³⁵ mit anderen Chemikalien und einem anderen Trennungsgang zum gleichen Ergebnis kommt.

⁵¹ T. T. SUGIHARA, H. I. JAMES, E. J. TROIANELLO u. V. T. BOWEN, Anal. Chem. **31**, 44 [1959].

⁵² V. T. BOWEN u. T. T. SUGIHARA, United Nations Int. Conf. Peaceful Uses of Atomic Energy, 2nd, Geneva 1958, P/403, Proc. **18**, 431 [1958].

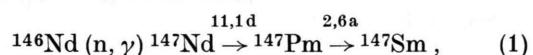
b) Spontanspaltung von ²³⁸U und ²³²Th: Die Möglichkeit, daß nachweisbare ¹⁴⁷Pm-Spuren bei der spontanen Spaltung von ²³⁸U entstehen, wurde von ATTREP und KURODA⁵⁴ durch Aufarbeitung von Pechblende festgestellt. Die kleinen Spaltausbeuten und die geringen Konzentrationen an ²³⁸U und ²³²Th ($\text{Th} < 0,1$, $U \ll 0,1$ Mol-%) im hier untersuchten Ausgangsmaterial sprechen jedoch beim Gadolinit gegen diese Möglichkeit. Entsprechend den Werten von ATTREP wäre eine Uranmenge von 6 kg in 200 kg Gadolinit erforderlich. Die notwendige Th-Menge läge entsprechend der Halbwertszeit für die Spontanspaltung sogar um 10^{4-10^5} höher.

c) Anreicherung von Aktinium: Auf Grund des Ionenradius von Ac^{3+} (1,11 Å gegenüber 1,06 Å von La^{3+}) wird in der Literatur eine chemische Ähnlichkeit des Ac^{3+} mit Pm^{3+} angenommen und sekundäre gebildete Pm-Spuren für die Halbwertszeit anomalien des Aktiniums bzw. Ac-Spuren für eine bei Ionenaustauschtrennungen diskutierte Aktivität in Nd/Sm-Zwischenfraktionen verantwortlich gemacht^{32, 33, 55}. Die hier erhaltenen Ergebnisse lassen sich jedoch nicht auf diese „Aktinium-Anomalie“ zurückführen, da die α -spektrometrische Messung der Pm-Fraktion kein Folgeprodukt des Aktiniums anzeigt und aus den Absorptionsmessungen das alleinige Vorhandensein von ¹⁴⁷Pm einwandfrei abzulesen ist.

d) Sekundärbildung aus ¹⁵¹Eu: Die — theoretisch ermittelte^{55a} — große Halbwertszeit des α -Zerfalls von ¹⁵¹Eu ($T_{1/2} = 3 \cdot 10^{19}$ Jahre) und die besonders geringe Konzentration des Eu im Gadolinit ($< 0,1$ Mol-%) lassen die diskutierbare Bildung des ¹⁴⁷Pm aus Eu (${}^{151}\text{Eu} \xrightarrow{\alpha} {}^{147}\text{Pm} \xrightarrow{\beta^-} {}^{147}\text{Sm}$)³² unwahrscheinlich werden.

3. Wahrscheinliche Bildung des ¹⁴⁷Pm

Da die im letzten Abschnitt besprochenen Möglichkeiten das Vorhandensein des ¹⁴⁷Pm im Gadolinit nicht erklären können, dürfte sehr wahrscheinlich die bei einem Neutroneneinfang durch ¹⁴⁶Nd ablaufende Aufbaureaktion



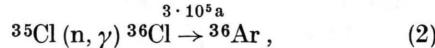
⁵³ M. C. DE BORTOLI u. P. GAGLIONE, Health Phys. **17**, 701 [1969].

⁵⁴ M. ATTREP jr. u. P. K. KURODA, J. Inorg. Nucl. Chem. **30**, 699 [1968].

⁵⁵ J. DANON, J. Inorg. Nucl. Chem. **7**, 422 [1958].

^{55a} M. NURMIA, Arkhimedes, **2** [1961].

die auch ERÄMETSÄ³⁵ diskutiert, zur Bildung des gefundenen ¹⁴⁷Pm geführt haben. Man findet in der Natur mehrere Radionuklide, die unter dem Einfluß von Neutronen der kosmischen Strahlung und der Umgebungsstrahlung laufend erzeugt werden^{56–58}, so daß die sekundäre Bildungsmöglichkeit von Radionukliden bei radiogeochemischen Betrachtungen allgemein berücksichtigt werden muß. Als Beispiel sei hier auf den Aufbau von ³⁶Cl über einen Neutroneneinfang des ³⁵Cl verwiesen, das in ³⁶Ar zerfällt:



wobei sich nach 10^6 Jahren eine Sättigungsaktivität von etwa 130 Imp/Stde. pro Gramm chloridhaltiger Gesteinsprobe (Phonolith u. a.) einstellt^{57, 59–62}. Erwähnt seien auch die in Chemikalien beobachteten Umwandlungen ³²S (n, p) ³²P oder ¹²⁷J (n, p) ¹²⁷Te⁶³.

Für die Gleichgewichtsmenge des nach Reaktion (1) gebildeten ¹⁴⁷Pm würde sich gemäß Gl. (3) bei Bestrahlung der im aufgearbeiteten Gadolinit enthaltenen Menge von 4000 g Neodym bei einem Neutronenfluß von $0,6 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ ein Wert von $6,6 \cdot 10^{-14} \text{ g}$ ergeben.

$$x = \sigma \Phi \frac{G_H}{M} \frac{A}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}). \quad (3)$$

In (3) bedeuten: x Menge des gebildeten Isotops (g); σ Einfangquerschnitt [1,3 barn für ¹⁴⁶Nd]; Φ Neutronenfluß [$\text{n/cm}^2 \cdot \text{sec}$]; G , M Menge und Atomgewicht des Ausgangsisotops; H Häufigkeit des Ausgangsisotops [17,22% bei ¹⁴⁶Nd]; A , λ Atomgewicht bzw. Zerfallskonstante des gebildeten Isotops; t Bestrahlungszeit, wobei sich ab $t > 10 \cdot T_{1/2}$ die Sättigungsaktivität einstellt.

Der für die hier gefundene ¹⁴⁷Pm-Sättigungsaktivität notwendige Minimalneutronenfluß von $0,6 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ ($= 36 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{min}$) liegt wesentlich

höher als fast alle von verschiedenen Autoren zitierten Werte (s. Tab. 8).

Neutronenfluß Φ ($\text{n/cm}^2 \cdot \text{min}$)	Literaturhinweis
0,0031–0,027	59
0,006	61
0,013	64
0,087	Eigene Messung
0,096	65
0,001–0,9	66
0,091	67
0,066–0,866	68
0,015–04	69
0,14	70
0,24	63
7	60
48	71
60	35

Anmerkung: Energieangaben variieren (s. Originalarbeiten).

Tab. 8. Übersicht über Neutronenflüsse Φ an der Erdoberfläche, in der Erdkruste bzw. in Gesteinen.

Bis auf die Werte in^{60, 71, 35} werden Neutronenflüsse angegeben, die um 10^{-2} – 10^{-4} niedriger liegen. Dabei ist zu bedenken, daß der hohe Wert von⁶⁰ über ³⁶Cl-Konzentrationen in Pechblende erhalten wurde, in der Notiz⁷¹ eventuell ein Druckfehler vorliegt (vergl. ausführliche Veröffentlichung⁶⁹) und³⁵ nur als Berechnungsbeispiel gelten soll^{71a}. Weiter ist zu ergänzen, daß CHERDYNTSEV⁶⁸ selbst in Hochgebirgslagen nur bis $3,3 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{min}$ gemessen hat. Auch die Reaktion ⁹Be (α , n) ¹²C kann trotz des relativ hohen Be- aber geringen Th- und U-Gehaltes des Gadolinit nach bisher vorliegenden Angaben⁶⁸ zu keinem Neutronenfluß der diskutierten Größenordnung beitragen. Eigene Messungen mit 8 kg Gadolinit ergaben mit und ohne Paraffinzwischenlagen keinen gegenüber dem jeweiligen Leerwert erhöhten Neutronenfluß

⁵⁶ H. ISRAEL, Naturwiss. Rundschau **18**, 307 [1965].

⁵⁷ D. LAL u. B. PETERS, Handbuch der Physik XLVI/2, 551 [1967].

⁵⁸ H. MEIER, Fortschr. Chem. Forsch. **7**, 233 [1966].

⁵⁹ R. DAVIS u. O. A. SCHAEFFER, Ann. New York Acad. Sci. **62**, 107 [1955].

⁶⁰ P. K. KURODA, R. R. EDWARDS, B. L. ROBINSON, J. H. JONTE u. C. GOOLSBY, Geochim. Cosmochim. Acta **11**, 194 [1957].

⁶¹ E. BAGGE u. H. WILLKOMM, Naturwiss. **50**, 299 [1963]; Atommenergie **11** 176 [1966].

⁶² C. RONZANI u. M. A. TUMERS, Radiochim. Acta **6**, 206 [1966].

⁶³ L. HUSAIN u. P. K. KURODA, J. Inorg. Nucl. Chem. **30**, 1121 [1968].

⁶⁴ K. MATHER, Austr. J. Phys. **9**, 147 [1956].

⁶⁵ M. YAMASHITA, L. D. STEPHANS u. H. W. PATTERSON, J. Geophys. Res. **71**, 3817 [1966].

⁶⁶ L. I. SHMONIN, V. V. CHERDYNTSEV, L. L. KASHKAROV u. V. F. OSTAPENKO, Geochemistry, Nr. 2, 127 [1959].

⁶⁷ C. G. MONTGOMERY u. D. D. MONTGOMERY, Phys. Rev. **56**, 10 [1939].

⁶⁸ V. V. CHERDYNTSEV, L. I. SHMONIN, V. F. OSTAPENKO, O. D. KHALDEEV u. L. L. KASHKAROV, Geochemistry, Nr. 3, 311 [1960].

⁶⁹ J. EUGSTER, Rev. Sci. Instr. **25**, 5 [1954].

⁷⁰ R. GOLD, Phys. Rev. **165**, 1406 [1968].

⁷¹ J. EUGSTER, Phys. Blätter, 278 [1952].

^{71a} O. ERÄMETSÄ, Persönliche Mitteilung.

($0 \pm 0,001$ n/cm² · min). Es liegt daher folgender Schluß nahe: entweder bildet sich ¹⁴⁷Pm nicht nur aus ¹⁴⁶Nd durch Neutroneneinfang, oder aber es ist notwendig, daß — wenigstens an den Fundorten des Gadolinits — Neutronenflüsse herrschen, die wegen des hohen Gadoliniumgehaltes und der seit dem Fundjahr erheblich abgeklungenen Aktivität des ¹⁴⁷Pm den hier errechneten Minimalfluß übersteigen und daher auch über den bisher gemessenen Werten liegen.

Eine Überprüfung dieser Frage, die auch im Zusammenhang mit anderen sekundären Aufbauprozessen von Radionukliden in Gesteinen interessiert (z.B. bei der Bildung von Tc⁷²), erscheint auf Grund obiger Ergebnisse angebracht. Aber nicht nur die sekundären Aufbauprozesse, sondern auch einige Altersbestimmungen, Fission-Track-Untersuchungen auf superschwere Kerne^{73, 73a} u. a. bedürften eventuell einer Überarbeitung, wenn man zu anderen als den bisher bekannten Werten käme.

4. Zur Frage eines langlebigen Pm-Isotops

Durch Beobachtung einer schwachen Linie im Röntgenfluoreszenzspektrum, die an der Stelle des Pm L_{α₁} lag, wurde von ERÄMETSA³⁵ die Möglichkeit der eventuellen Existenz eines langlebigen Pm-Isotops in Betracht gezogen. Eine Überprüfung dieses Befundes mußte hier vorerst zurückgestellt werden, da mit dem verwendeten Gerät (Philips-Vakuum-Spektrograph) im interessierenden Winkelbereich eine mit den Meßbedingungen variierende Erhöhung des Meßlinienuntergrunds in den Nd/Sm-Mischfraktionen registriert wurde, die möglicherweise den Cr K_α-Linien (als evtl. Verunreinigungen des W-Anodenmaterials) zuzuschreiben ist; es gilt nämlich: Pm L_{α₁} = 2,278 Å; Cr K_{α₁} = 2,285 Å und Cr K_{α₂} = 2,289 Å.

Bei Diskussion der möglichen Existenz eines langlebigen Promethiumnuklids muß berücksichtigt

werden, daß eines der bekannten kurzlebigen Pm-Isotope auch als langlebiges Isomer vorkommen könnte. Die Existenz eines kurzlebigen Isotops ist nämlich kein Hindernis für das Vorkommen von langlebigen Isomeren eines Isotops⁷⁴, wie beispielsweise das Auffinden des ¹⁸⁰Ta zeigt^{75, 76}, das vorher nur als kurzlebiges Ta-Isotop⁷³ ($T_{1/2} = 8,15$ h) bekannt war. Erwähnt sei auch das Beispiel des geochronologisch wichtigen⁵⁸ langlebigen ²⁶₁₃Al-Isotops ($T_{1/2} = 7,4 \cdot 10^5$ a), das neben einem kurzlebigen ²⁶₁₃Al-Isomeren ($T_{1/2} = 6,1$ sec) existiert und erst 1954 entdeckt wurde⁷⁷. Auch in der Gruppe der Seltener Erden kennt man isomere Isotope: ¹⁷⁶Lu kommt nicht nur kurzlebig ($T_{1/2} = 3,7$ h) sondern auch als sehr langlebiges Isomer mit einer Halbwertszeit von $T_{1/2} = 2,2 \cdot 10^{10}$ a³¹ vor. Die Möglichkeit der Existenz eines langlebigen betaaktiven Pm-Isomeren, die nach BALLOU⁷⁸ aus kerntheoretischen Gründen diskutierbar erscheint, kann deshalb nicht ausgeschlossen werden. Die Tatsache, daß alle bekannten Pm-Isotope kurzlebig sind und ¹⁴⁷Pm in der Natur radiogen entsteht, spricht nicht gegen diese Annahme. Das gefundene ¹⁴⁷Pm kann im Gegenteil als natürlicher Tracer bei der im weiteren vorgesehenen Suche nach einem eventuellen langlebigen Isomeren eines der bekannten Pm-Isotope dienen.

Das Bundesministerium für Bildung und Wissenschaft und besonders das Bundesministerium für Verteidigung haben die Arbeit in dankenswerter Weise durch Bereitstellung von Mitteln wesentlich gefördert. Für Zuwendungen danken wir auch dem Fonds der Chemischen Industrie. Bei der BASF, Ludwigshafen, bedanken wir uns für die kostenlose Überlassung von Chemikalien und bei den Farbenfabriken Bayer, Leverkusen, zusätzlich für die Möglichkeit zur Durchführung von Aufschlüssen im größeren Maßstab. Unser Dank gilt auch Herrn Dr. G. OERTEL (jetzt Bayer, Leverkusen) und Herrn Dr. J. WOIDT (jetzt Varta-AG), die zu Beginn der Aufarbeitungen beteiligt waren.

⁷² G. E. BOYD u. Q. V. LARSON, J. Phys. Chem. **60**, 707 [1956].

⁷³ G. N. FLEROV u. V. P. PERELYGIN, Atomnaya Energiya **26**, 520 [1969].

^{73a} O. OTGONSUREN, V. N. PERELYGIN u. G. N. FLEROV, Doklady Akad. Nauk SSSR **189**, 1200 [1969].

⁷⁴ E. K. GERLING, L. K. LEVSKY u. L. I. AFANASSIEVA, In: Radioisotopes in Scientific Research II (Ed. R. C. Extermann), Pergamon Press, New York 1958, S. 543.

⁷⁵ J. E. EVANS, E. G. JOKI u. R. R. SMITH, Phys. Rev. **97**, 565 [1955].

⁷⁶ F. A. WHITE, T. L. COLLINS u. T. M. ROURKE, Phys. Rev. **97**, 566 [1955].

⁷⁷ J. R. SIMANTON, R. A. RIGHTMIRE, A. LONG u. T. P. KOHMAN, Phys. Rev. **96**, 1711 [1954].

⁷⁸ N. E. BALLOU, Phys. Rev. **73**, 630 [1948].