

Die chemische Fixierung von Kryptonisotopen in Zeolith 5A – Voraussetzung für die Messung von 25 keV Neutroneneinfangquerschnitten mit der Aktivierungstechnik

R.-D. Penzhorn, G. Walter und H. Beer
Kernforschungszentrum Karlsruhe, IRCH und IAK-II, 7500 Karlsruhe

Z. Naturforsch. **38a**, 712–718 (1983); received March 4, 1983

The Chemical Fixation of Kr Isotopes in Zeolite 5A. – Prerequisite for the Determination of 25 keV Neutron Capture Cross Sections with the Activation Method

By chemical fixation of Kr in zeolite 5A adequate samples can be obtained to determine the capture cross section of reactions such as $^{84}\text{Kr}(\text{n},\gamma)^{85}\text{Kr}^m$ and $^{86}\text{Kr}(\text{n},\gamma)^{87}\text{Kr}$. The employed zeolite loading was of the order 52–66 [cm³ STP Kr/g zeolite]. The capture cross section of the reaction $^{84}\text{Kr}(\text{n},\gamma)^{85}\text{Kr}^m$ was determined at thermal and 25 keV neutron energy. The value obtained at 25 keV is of relevance to the stellar nucleosynthesis of heavy elements.

Einleitung

Nach den gängigen Vorstellungen über den Aufbau der Elemente [1] werden Nuklide schwerer als Eisen hauptsächlich durch sukzessiven Neutroneneinfang gebildet. Man unterscheidet dabei einen schnellen und einen langsamem Einfangprozeß (r- bzw. s-Prozeß), deren Beiträge zu den solaren Häufigkeiten ungefähr von der gleichen Größenordnung sind. Die Einteilung r(apid)- und s(low)-Prozeß bezieht sich auf die zu den Einfangraten λ_n konkurrierenden β -Zerfallsraten λ_β instabiler Nuklide ($\lambda_n \ll \lambda_\beta$: s-Prozeß; $\lambda_n \gg \lambda_\beta$: r-Prozeß). Da die Zeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Neutroneneinfangen im s-Prozeß zwischen 10 und 100 a liegt (je nach Größe des Neutronenflusses und Einfangquerschnitts), kann es für Radionuklide mit β -Halbwertszeiten der gleichen Größenordnung zu Verzweigungen des s-Prozeßpfads kommen. Eines der prominentesten Beispiele ist ^{85}Kr ($\tau_{1/2} = 10,76$ a). Der Verlauf des s-Prozeßpfads im Stabilitätsstal ist in der Krypton-Massengegend (s. Abb. 1) durch eine durchgezogene Linie gekennzeichnet. Der r-Prozeß findet aufgrund seiner hohen Einfangrate auf der neutronenreichen Seite des Stabilitätsstals statt.

Die Beiträge zu den stabilen Isotopen sind durch die schrägen Pfeile angedeutet. Die Analyse einer s-Prozeßverzweigung wie bei ^{85}Kr liefert Aussagen

über die Größe des Neutronenflusses während der Synthese. Solare Häufigkeiten und Neutroneneinfangquerschnitte mit der thermischen Energie $kT = 30$ keV bilden die Eingangsdaten für solche Untersuchungen. Bei der Analyse der ^{85}Kr Verzweigung spielt die Populierung eines isomeren Zustands mit einer Halbwertszeit von 4,5 h durch Neutroneneinfang eine besondere Rolle [2, 3, 4].

Ziel dieser Arbeit war die Bestimmung der für die Verzweigungsanalyse wichtigen Querschnitte der Reaktionen $^{84}\text{Kr}(\text{n},\gamma)^{85}\text{Kr}^m$ und $^{86}\text{Kr}(\text{n},\gamma)^{87}\text{Kr}$. Für die erforderlichen Untersuchungen wurde die Methode der Aktivierungsanalyse gewählt. Die Reaktion $^{84}\text{Kr}(\text{n},\gamma)^{85}\text{Kr}^m$ kann nur auf diese Weise untersucht werden. Dabei ist im allgemeinen eine Probendicke von 10^{-4} bis 10^{-5} Atome/barn erforderlich, die für die meisten Elemente durch Herstellung einer Oxydtablette oder eines Metallplättchens von 6 mm Ø erreicht werden kann. Bedingt durch die niedrigen Einfangquerschnitte der zu untersuchenden Kryptonuklide bzw. den begrenzten Neutronenfluß, der üblicherweise zur Verfügung steht, ist eine Verdichtung des Targetgases notwendig. Für Kr konnten in der Vergangenheit solche Voraussetzungen durch den Bau aufwendiger Kryostaten geschaffen werden [5]. Auch gew. Einschlußverbindungen, wie Hydrochinon-Chlatrate [6–8], die sich durch hohe Strahlenbeständigkeit auszeichnen [9–12], sind als Träger bei der Bestimmung von Neutroneneinfangquerschnitten mehrerer Kr- und Xe-Nuklide eingesetzt worden [13]. Bei der Verwendung von epithermischen Neutronen kann

Sonderdruckanforderungen an Dr. R.-D. Penzhorn, IRCH, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Postfach 3640, 7500 Karlsruhe.

0340-4811 / 83 / 0700-0712 \$ 01.3 0/0. – Please order a reprint rather than making your own copy.



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.

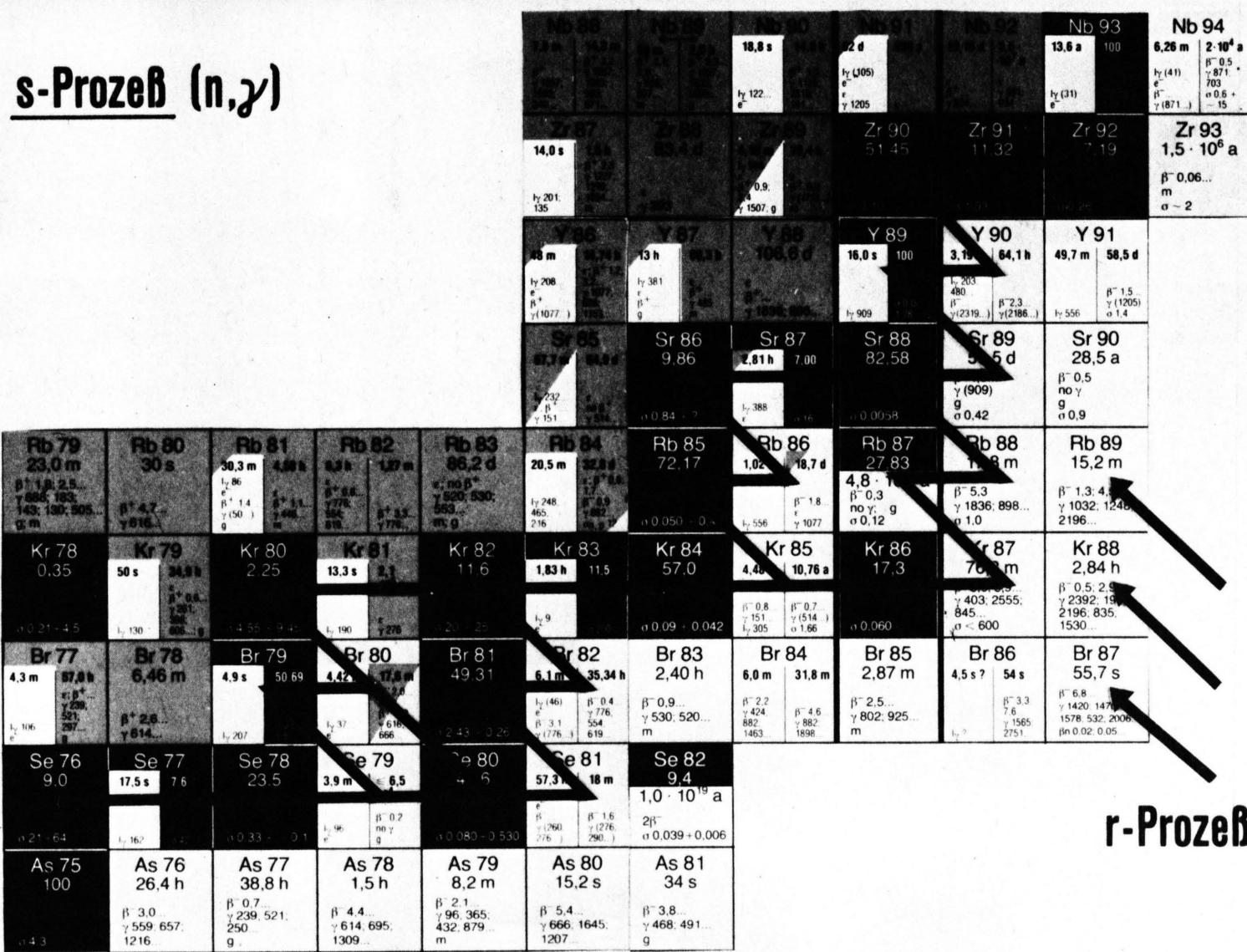


Abb. 1. Ausschnitt aus der Nuklidkarte zur Erläuterung der Synthese schwerer Elemente im Kosmos. Während der Synthesepfad im s-Prozeß im Stabilitätsstal der Nuklidkarte verläuft, ist er im r-Prozeß auf die neutronenreiche Seite verlagert.

sich jedoch der relativ hohe Gehalt an Wasserstoff der Chlaltrate als nachteilig erweisen, da durch Streuung der Neutronen eine Änderung des Energiespektrums dieser herbeigeführt werden könnte. Von anderen neuartigen Einschlusverbindungen, die potentiell als Gasträger in Frage kommen, ist gegenwärtig hinsichtlich ihres Verhaltens im Strahlenfeld bzw. ihrer chemischen und thermischen Beständigkeit zu wenig bekannt [14, 15].

Die Beobachtung, daß Ar, Kr und Xe dauerhaft in Typ A Zeolithen bzw. in Mordenit oder Chabazit fixiert werden können, wenn die ursprüngliche Kristallstruktur hydrothermal verglast wird, hat neue Möglichkeiten für die Durchführung der Aktivierungsanalyse von Gasen eröffnet [16]. Zur Fixierung eines Edelgases wird das bis auf einen Restgehalt an Wasser aktivierte Zeolith in Anwesenheit des verdichten Gases bis auf Temperaturen erhitzt, die in einem wohldefinierten Bereich liegen. Dabei hängt der erforderliche Rest-Wassergehalt von der gewählten Fixierungstemperatur und der Zusammensetzung der die negative Ladung des Silikatgitters kompensierenden Kationen ab [17, 18].

Experimentelle Methode

Die chemische Zusammensetzung der zur Immobilisierung von Krypton verwendeten Zeolithe ist der Tab. 1 zu entnehmen. Die Kenntnis dieser Daten ist u. a. notwendig, um die Korrekturen der Gamma-Selbstabsorption und der Neutronen-Vielfachstreuung anbringen zu können. Störend bezüglich Comptonuntergrund im Gammaspektrum des Ge(Li)-Detektors, der die charakteristischen Linien aus den $^{85}\text{Kr}^m$ - und ^{87}Kr -Zerfällen aufnimmt, kann sich ein hoher Gehalt an Na und K auswirken, da diese Elemente ebenfalls aktiviert werden mit Gammalinen oberhalb der interessierenden Gammalinen aus den Kr-Isotopen. Es wurden demzufolge bindemittelfreie Molekularsiebe bevorzugt,

die durch einen hohen Erdalkalionen-Austauschgrad gekennzeichnet sind. Weiterhin wurde darauf geachtet, die Probe weitgehend wasserfrei zu halten, um Streuungen durch Wasserstoff der im keV-Energiebereich einfallenden Neutronen zu vermeiden. Obgleich das Zeolith vor der Edelgaseinpressung noch etwa 3–4 Gew.-% Wasser enthält, wenn die Vorbehandlung bei 250 °C, und etwa 0,8 Gew.-%, wenn die Vorbehandlung bei 450 °C vorgenommen wird, haben NMR-Messungen gezeigt, daß dieser Restwassergehalt auf etwa 1,2 Gew.-% nach Fixierung bei 520 °C (80% als gebundenes und 20% als labiles H₂O) bzw. auf 0,5 Gew.-% nach Fixierung bei 650 °C (50% als OH und 50% als labiles H₂O) abnimmt.

Die Fixierung des Edelgases geschah in einem für 3000 bar und 750 °C ausgelegten 0,01 l Autoklaven, der bis auf ein Gaseinlaßventil und einen Druckaufnehmer vollständig in einen senkrecht stehenden Rohrofen eingebracht werden konnte. Der erste Schritt bestand darin, das in dem Autoklaven vorgelegte Zeolith durch Erhitzen unter Vakuum zu entwässern (Vorbehandlung). Ein an den Autoklaven angeschlossener, in seinem Nutzvolumen etwa 15 ml umfassender dickwandiger Cu/Be-Behälter diente zur Gasverdichtung. Diese erfolgte durch Ausfrieren des entsprechenden Gases mit fl. N₂ und anschließender Verdampfung bis auf den zur Fixierung gewünschten Druck. Als Sorbat wurde nat. Kr von Messer-Griesheim (Reinheit > 99,99 Vol.-%) benutzt. Nach Ausführung des Gaseinschlusses wurde an einem Teil der Probe mehrmals die Beladung bestimmt, wofür sie in einem Quarzrohr, das an eine Glasapparatur mit bekanntem Volumen angeschlossen war, so lange bis auf 1100 °C erhitzt wurde, bis der Druck konstant blieb. Danach wurde die Zusammensetzung des freigesetzten Gases gaschromatographisch analysiert und die Beladung über eine PVT-Rechnung mit einer Genauigkeit von etwa 3% ermittelt. Experimente mit radio-

Tab. 1. Chemische Zusammensetzung der verwendeten Zeolithe (n. b. = nicht bestimmt).

Zeolith	Mol.-%					
	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	SiO ₂	Al ₂ O ₃
Mg _{4,90} A 2,4–4,8 mm Kugeln	0,02	0,29	0,09	n. b.	0,69	0,40
Ca _{5,66} A 2,4–4,8 mm Kugeln	0,36	0,02	0,003	n. b.	0,67	0,38

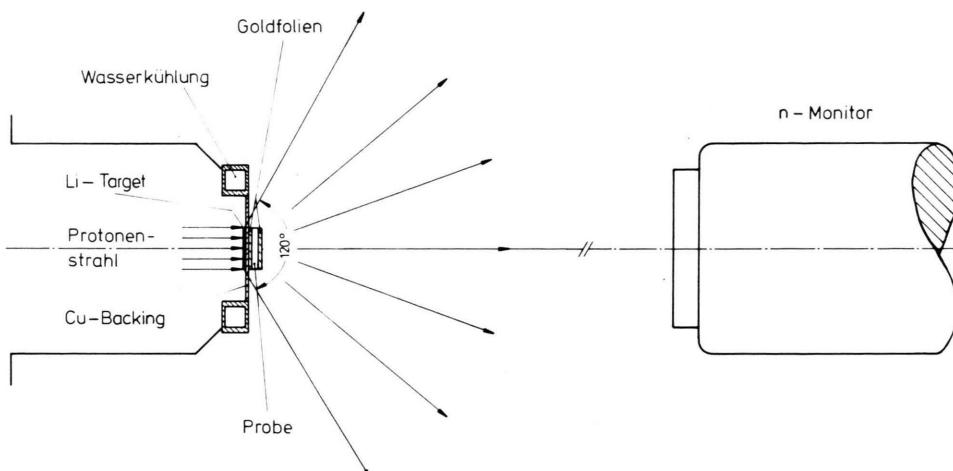


Abb. 2. Schema der Meßanordnung für die Messung von Neutroneneinfang-Querschnitten.

aktivem ^{85}Kr (etwa 0,03 Ci $^{85}\text{Kr}/\text{g}$ Zeolith) erbrachten den Nachweis, daß bei 1100 °C etwa 97% des eingeschlossenen Gases freigesetzt werden. Diesem Befund wurde durch entsprechende Korrektur Rechnung getragen.

Die Bestimmung der Querschnitte geschah mit der Aktivierungsmethode. Dazu wurden aus den übrigen Kr-beladenen Zeolithkugelchen Tabletten (etwa 6 mm Ø) hergestellt und diese zwischen zwei Goldfolien gleicher Dimension gelegt, wobei der Neutroneneinfang am ^{197}Au als Referenzquerschnitt dient. Die Messung ist durch einen relativ hohen Neutronenfluß am Ort der Probe gekennzeichnet, wodurch sich ein günstiges Signal/Untergrund-Verhältnis ergibt. Ein weiterer Aspekt, der in Betracht gezogen werden muß, ist, daß im Falle des ^{84}Kr nicht nur der Grundzustand des Folgekerns populiert wird, sondern auch ein isomerer Zustand mit völlig anderen Zerfallseigenschaften. Zur Trennung dieses Anteils vom gesamten Querschnitt ist ebenfalls die Aktivierungsmethode besonders geeignet. Die experimentelle Bestrahlungsanordnung ist der früheren Aktivierungen ähnlich (s. Abb. 2) [19]. Die Neutronen werden über die $^7\text{Li}(\text{p},\text{n})$ -Reaktion durch Bestrahlung von metallischem Lithium mit dem Protonenstrahl eines Van de Graaff Beschleunigers erzeugt. Wird dabei die Energie des Protonenstrahls knapp über der Reaktionsschwelle eingestellt (Reaktionsschwelle: 1,881 MeV), dann erzielt man durch den Rückstoß des ^8Be -Compound-

kerns eine kinematische Kollimierung des Neutronenstrahls. Die am Ort der Probe während der Aktivierung registrierte Energieverteilung des Neutronenflusses, wird in Abb. 3 mit der Maxwellverteilung für $kT = 25$ keV verglichen. Aus dem Bild geht hervor, daß der erzeugte Neutronenfluß die thermische Verteilung für $kT = 25$ keV nahezu perfekt simuliert.

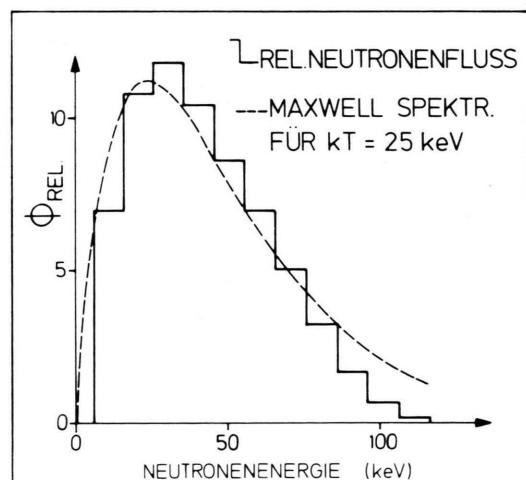


Abb. 3. Energieverteilung des in der $^7\text{Li}(\text{p},\text{n})$ -Reaktion erzeugten Neutronenflusses. Zum Vergleich ist ein Maxwellpektrum für $kT = 25$ keV eingezeichnet.

Ergebnisse und Diskussion

Die Kryptonbeladungen der zur Einfangquerschnitt-Bestimmung verwendeten Zeolithe sowie die entsprechenden Fixierungsbedingungen sind in Tab. 2 wiedergegeben. Ein Vergleich der Röntgenverteilungsbilder von Al, Si und Kr im amorphen 5A Zeolith liefert den Beweis, daß die Kr-Atome nicht in Bläschen unterschiedlicher Dimension, sondern homogen, in sehr kleinen Einheiten ($< 2\mu\text{m} \varnothing$) eingeschlossen sind [20].

Eine Verifizierung der Beladung nach der Bestrahlung mit epithermischen Neutronen wurde nicht für notwendig erachtet, da begleitende Versuche ergaben, daß eine mehrmonatige Gammabestrahlung mit einer Gesamtdosis von ca. $3 \cdot 10^6$ [kJ/kg] zu keiner strahlenbedingten Freisetzung des eingeschlossenen Gases führt [18]. Darüber hinaus haben sich 5A Zeolithproben, die bis zu 0,03 [Ci $^{85}\text{Kr}/\text{g}$] enthalten (β -Strahlung mit $\epsilon_{\max} = 0,67$ MeV), als stabil erwiesen [21]. Ähnliche Beobachtungen hinsichtlich der Strahlenbeständigkeit von Zeolithen sind auch von anderen Autoren bei der Entsorgung von hochaktivem ^{137}Cs -Abfall [22] bzw. bei der Bestrahlung von Typ X Zeolith mit sehr hohen Neutronen-Strahlungsdosen gemacht worden [23]. Vermutlich bildet sich durch Strahlen-einwirkung eher eine amorphe oder semiamorphe

Tab. 2. Kryptonbeladungen und Fixierungsbedingungen für die Aktivierungsproben. Vorbehandlung: 40 h bei 250°C .

Zeolith	Gas	Fixierungsbedingungen		Beladung ^a [Norm cm^3/g]
		Druck [bar]	Temp. [$^\circ\text{C}$]	
$\text{Mg}_{4,90}\text{A}$	nat. Kr.	1610	520	$52,8 \pm 1,3$
$\text{Ca}_{5,66}\text{A}$	nat. Kr.	1930	520	$66,3 \pm 1,4$

^a bezogen auf unbeladenes Zeolith.

Tab. 3. Zusammenstellung einiger für die Aktivierung relevanter Daten.

Nuklid	Natürliche Häufigkeit %	Halbwertszeit des (n, γ)-Isotops	ϵ_γ [keV]	I_γ [%]
^{84}Kr	57	4,48 h	151	$78,26 \pm 4,76$
^{197}Au	100	2,69 d	305 ^a 412	$14 \pm 0,4$ $95,5 \pm 0,00$

^a Isomerenübergang.

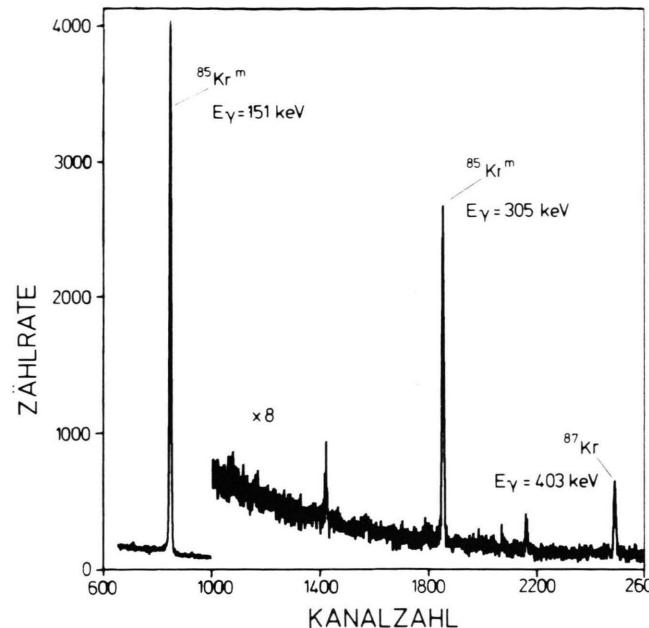


Abb. 4. Gammaspектren von aktiviertem, natürlichem Krypton, gemessen mit einem Ge(Li) Detektor über einen Zeitraum von einer Stunde.

Phase aus, durch die, angesichts der ausbleibenden Fernordnung, die Gasdiffusion wesentlich langsamer vonstatten geht [24]. Im Gegensatz zu Chlattraten ist die chemische und thermische Beständigkeit des in amorphem Zeolith eingelagerten Edelgases außergewöhnlich hoch. Die Kr-Ausgasrate liegt beispielsweise, je nach Probenherstellung und Zeolithart, selbst bei 500°C nur bei einigen Prozenten pro Jahr [16–18]. Eine thermisch-bedingte Edelgasfreisetzung kann somit ebenfalls ausgeschlossen werden.

Erste Aktivierungsmessungen wurden mit natürlichem Krypton durchgeführt. Die für die Bestimmung der Querschnitte relevanten Größen sind in Tab. 3 zusammengestellt. Die Gammaliniie von ^{87}Kr liegt dicht unterhalb der Goldreferenzlinie bei 412 keV, so daß Kr und Au getrennt ausgezählt wurden, um den Comptonuntergrund der Au-Linie zu vermeiden. Die Proben wurden insgesamt 4 h bestrahl und anschließend über einen Zeitraum von mehreren Stunden ausgezählt. Abbildung 4 zeigt im Gammaspектren einer Zeolithprobe, die natürliches Krypton enthält, die charakteristischen Zerfallslinien der angeregten $^{85}\text{Kr}^m$ - und ^{87}Kr -Nuklide. Das Spektrum verdeutlicht, daß der Gehalt an ^{84}Kr im natürlichen Krypton (57%) ausreichend ist, um den Querschnitt der Reaktion

$^{84}\text{Kr}(n, \gamma)^{85}\text{Kr}^m$ zu bestimmen, während für die Untersuchung der $^{86}\text{Kr}(n, \gamma)^{87}\text{Kr}$ -Reaktion hoch angereichertes ^{86}Kr erforderlich ist, um die Empfindlichkeit der Messung zu erhöhen.

Die Zahl der aktivierte Kr-Kerne, A_{Kr} , ergibt sich aus

$$A_{\text{Kr}} = \phi_T N_{\text{Kr}} \sigma_{\text{Kr}} f_B^{\text{Kr}},$$

wobei $\phi_T = \int \phi(t) dt$ der über die Zeit integrierte Neutronenfluß ist, N die Probendicke in [Atome/barn] darstellt, und σ_{Kr} der zu bestimmende Querschnitt ist. Mit dem Faktor f_B^{Kr} wird für den Zerfall aktivierter $^{85}\text{Kr}^m$ -Kerne während der Neutronenbestrahlung korrigiert. Um die Absolutmessung des Neutronenflusses zu vermeiden, wurde die Messung relativ zu dem gut bekannten Goldquerschnitt durchgeführt [25]:

$$\frac{A_{\text{Kr}}}{A_{\text{Au}}} = \frac{\sigma_{\text{Kr}} N_{\text{Kr}} f_B^{\text{Kr}}}{\sigma_{\text{Au}} N_{\text{Au}} f_B^{\text{Au}}}.$$

Als zusätzliche Kontrolle wurde der Querschnitt der Reaktion $^{84}\text{Kr}(n, \gamma)^{85}\text{Kr}^m$ auch für thermische Neutronenenergie am Karlsruher FR2 Reaktor bestimmt. Das Ergebnis dieser Aktivierung ist in guter Übereinstimmung mit der Messung von Kondaiah *et al.* [13]. Die Querschnittsmessungen sind in Tab. 4 zusammengestellt. Die Ergebnisse zweier Aktivierungen mit verschiedenen Zeolithen ergab ebenfalls ausgezeichnete Übereinstimmung. Mit den Querschnitten dieser Arbeit kann das Isomerenverhältnis (IR) bei 0,025 eV und 25 keV berechnet werden:

$$\text{IR}_{\text{thermisch}} = \frac{85}{85 + 42} = 0,67 \pm 0,06,$$

$$\text{IR}_{25\text{ keV}} = \frac{21}{41} = 0,52 \pm 0,05.$$

Tab. 4. Einfangquerschnitte der Reaktion $^{84}\text{Kr}(n, \gamma)^{85}\text{Kr}^m$.

Edelgas-träger	Neutronen-energie [eV]	Einfang-querschnitt [mb]	Bemerkungen
Chlatrat	$2,5 \cdot 10^{-2}$	90 ± 13	Kondaiah <i>et al.</i> (1968)
Ca-Zeolith	$2,5 \cdot 10^{-2}$	85 ± 6	^a
Ca-Zeolith	$2,5 \cdot 10^4$	$21,6 \pm 1,6$	^a
Mg-Zeolith	$2,5 \cdot 10^4$	$21,1 \pm 1,6$	

^a Die Werte dieser Arbeit wurden mit einem Goldquerschnitt von $\sigma_{\text{thermisch}} = 98,8 \pm 0,3$ b und $\sigma_{kT=25\text{ keV}} = 657 \pm 16$ mb berechnet.

Der totale Einfangquerschnitt von ^{84}Kr bei 25 keV wurde von Leugers *et al.* [26] gemessen, der thermische ^{84}Kr -Querschnitt zum ^{85}Kr Grundzustand wurde der Kompilation von Mughabghab und Garber entnommen [27]. Das Isomerenverhältnis $\text{IR}_{25\text{ keV}}$ ist erwartungsgemäß kleiner als $\text{IR}_{\text{thermisch}}$, da im Einfangprozeß bei höherer Neutronenenergie durch das Auftreten von Neutronen größeren Drehimpulses eine stärkere Populierung des ^{85}Kr Grundzustands mit Spin $9/2^+$ zu erwarten ist. In der vorliegenden Arbeit wurde dargelegt, daß durch chemische Fixierung von Kryptonisotopen in Verbindung mit einer erprobten Aktivierungs-technik die Einfangquerschnitte der Reaktionen $^{84}\text{Kr}(n, \gamma)^{85}\text{Kr}^m$, $^{86}\text{Kr}(n, \gamma)^{87}\text{Kr}$ bei $kT = 25$ keV Neutronenenergie gemessen werden können. Die Bestimmung des ^{86}Kr Einfangquerschnitts erfordert angereichertes ^{86}Kr . Die Kr-Querschnitte bilden in Verbindung mit weiteren Querschnitten an $^{85,87}\text{Rb}$ und $^{86,87,88}\text{Sr}$ die Grundlage für eine Analyse der ^{85}Kr Verzweigung, die in einer weiteren Arbeit vorgelegt werden soll.

- [1] E. M. Burbidge, G. R. Burbidge, W. A. Fowler u. F. Hoyle, *Rev. Mod. Phys.* **29**, 547 (1957).
- [2] R. A. Ward, *Astrophysical J.* **216**, 540 (1977).
- [3] H. Beer u. F. Käppeler, *Proc. 4th Int. Symp. on Neutron Capture, γ -ray Spectroscopy and Related Subjects, Grenoble*, Pergamon Press 558 (1981).
- [4] F. Käppeler, H. Beer, K. Wissak, D. D. Clayton, R. L. Macklin u. R. A. Ward, *Astrophysical J.* **257**, 821 (1982).
- [5] C. M. Jensen, W. M. Buckley, R. G. Lanier u. G. L. Struble, *Nuclear Instr. and Methods* **135**, 21 (1976).
- [6] H. M. Powell, *J. Chem. Soc.* **300**, 1950.
- [7] F. Cramer u. F. M. Henglein, *Chem. Berichte* **90**, 2572 (1957).
- [8] R. R. Stottlemeyer u. W. S. Diethorn, *Int. J. Appl. Rad. Isotopes* **16**, 751 (1965).
- [9] D. J. Chleck u. C. A. Ziegler, *Nucleonics* **17**, 130 (1959).
- [10] J. E. Mock, J. E. Myers u. E. A. Trabant, *Ind. Eng. Chemistry* **53**, 1007 (1961).
- [11] J. W. McClain u. W. S. Diethorn, *Int. J. Appl. Rad. Isotopes* **15**, 151 (1964).
- [12] B. A. Staples u. D. T. Pence, ICP-1045 July (1974).
- [13] E. Kondaiah, N. Ranakunar u. R. W. Fink, *Nuclear Physics A* **120**, 329 (1968).
- [14] H. Gies, F. Liebau u. H. Gerke, *Angew. Chem.* **94**, 214 (1982).
- [15] M. Kämpfer, M. Wagner u. A. Weiß, *Angew. Chem.* **91**, 517 (1979).
- [16] R.-D. Penzhorn, P. Schuster, H. E. Noppel u. L. M. Hellwig, *Proc. of the Int. Symp. on Management of Gaseous Wastes from Nuclear Facilities, Wien*, Feb. 1980.
- [17] R.-D. Penzhorn, P. Schuster, H. Leitzig u. H. E. Noppel, *Ber. Bunsen Gesellschaft* (1982).
- [18] R.-D. Penzhorn, *Proc. 16th DOF Nuclear Air Cleaning Conf., San Diego*, 1034 (1980).
- [19] H. Beer u. F. Käppeler, *Phys. Rev. C* **21**, 534 (1980).
- [20] E. F. Vansant *et al.*, *Zeolites* (im Druck).
- [21] R.-D. Penzhorn, H. Leitzig, K. Günther, P. Schuster u. H. E. Noppel, *Proc. 17th DOE Nuclear Air Cleaning Conf., Denver* 1982.
- [22] L. A. Bray u. H. T. Fullam, *Adv. Chemistry Series* 101, *Molecular Sieves – Zeolites*, Amer. Chem. Soc. (1971).
- [23] L. V. C. Rees u. C. J. Williams, *Trans. Faraday Soc.* **61**, 1481 (1965).
- [24] L. A. Bursill, E. A. Lodge u. J. M. Thomas, *Nature London* **286**, 111 (1980).
- [25] D. Garber, *ENDFIB-IV, Report BNL-17541 (ENDF-201)*, 1975.
- [26] B. Leugers, F. Käppeler, F. Fabbri u. G. Reffo, *NBS Special Publication* **594**, 857 (1980).
- [27] S. F. Mughabghab u. D. J. Garber, *Brookhaven National Laboratory report BNL 325*, 3d ed., Vol. 1 (1973).