

# ANGEWANDTE CHEMIE

FORTSETZUNG DER ZEITSCHRIFT »DIE CHEMIE«

HERAUSGEGEBEN VON DER GESELLSCHAFT DEUTSCHER CHEMIKER

77. JAHRGANG

NR. 22 · SEITE 981–1048

21. NOVEMBER 1965

## Zum Aufbau von Transcurium-Elementen durch Kernreaktionen mit schweren Ionen

VON PRIV.-DOZ. DR. C. KELLER

LEHRSTUHL FÜR RADIOCHEMIE, TECHNISCHE HOCHSCHULE KARLSRUHE UND INSTITUT  
FÜR RADIOCHEMIE, GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M.B.H., KARLSRUHE,  
KERNFORSCHUNGSZENTRUM

*Die experimentellen Möglichkeiten zum Aufbau von Transcurium-Elementen werden aufgezeigt. Kernreaktionen mit schweren Ionen bieten die größten Aussichten, weitere Elemente und bisher unbekannte Isotope der Transcurium-Elemente darzustellen. Diese Kernreaktionen werden äußerst kleine Wirkungsquerschnitte besitzen, so daß nur sehr wenige Atome erhalten werden können. Infolge der kurzen Halbwertszeiten der schwersten Kerne wird die Identifizierung neuer Elemente vermutlich nur indirekt auf Grund ihrer Bildungs- und Zerfallswahrscheinlichkeiten möglich sein.*

### A. Einleitung

Seit der Frühzeit der Naturwissenschaften sind Versuche zur Umwandlung chemischer Elemente bekannt. Der Nachweis einer Elementumwandlung jedoch konnte erstmals 1896 von *Becquerel* erbracht werden. Allerdings handelte es sich hierbei nicht um einen von Menschenhand bewirkten Aufbau eines neuen Elements, sondern um den radioaktiven Selbstzerfall schwerer Atomkerne. Eine Kernaufbaureaktion wurde erstmals 1919 von *Rutherford* mit der Reaktion  $^{14}_{\text{N}}(\alpha, p)^{17}_{\text{O}}$  entdeckt.

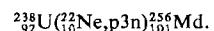
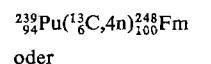
Technetium war das erste „künstliche“, in der Natur primordial nicht vorkommende Element (*Perrier* und *Segré*, 1937). Drei Jahre nach der Entdeckung des Technetiums gelang es, das Neptunium, das erste Transuran-Element, herzustellen (*McMillan* und *Abelson*, 1940). In den folgenden Jahren wurden sowohl das im Periodensystem noch fehlende Element 61 (Promethium) als auch die schweren Transurane bis zur Ordnungszahl 104, dem ersten Transactiniden-Element, entdeckt.

### B. Möglichkeiten zum Aufbau der schwersten Elemente

Als Ausgangssubstanzen für die Synthesen der schwersten Elemente werden entweder die natürlich vorkommenden schweren Nuklide, z. B.  $^{238}_{\text{U}}$  und  $^{232}_{\text{Th}}$ , oder

durch Kernreaktionen dargestellte Kerne, z. B.  $^{242}_{\text{Pu}}$  oder  $^{246}_{\text{Cm}}$ , verwendet. Isotope der Transcurium-Elemente lassen sich auf zwei Wegen aufbauen.

1. Durch Beschuß von Elementen hoher Ordnungszahl mit „schweren“ Ionen, wobei der intermedial gebildete Zwischenkern geladene und ungeladene Partikel verdampft, wie z. B. bei den Reaktionen

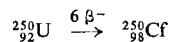


Es ist verständlich, daß man über derartige Kernreaktionen, die allein mit Beschleunigern durchgeführt werden können, nur unwägbar kleine Mengen oder gar nur wenige Atome der gesuchten Elemente erhalten kann. Außerdem lassen sich über diesen Aufbauprozess – von einigen Ausnahmen abgesehen – nur neutronenarme Isotope der schwersten Elemente darstellen.

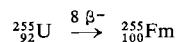
2. Durch multiplen Neutroneneinfang und folgende  $\beta^-$ -Zerfälle der neutronenreichen Kerne. Hierzu gibt es drei Möglichkeiten:

a) Neutroneneinfang bei sehr hoher Neutronenflußdichte ( $10^{23}$  bis  $10^{25}$  Neutronen/cm $^2$ ), wie sie etwa in Kernexplosionen für ca.  $10^{-6}$  bis  $10^{-8}$  sec vorhanden ist. Während eines so intensiven Neutronenschauers bilden

sich z. B. aus  $^{238}_{92}\text{U}$  durch mehrfachen Neutroneneinfang Uran-Isotope mit hohem Neutronenüberschuß [\*]. Die Zahl der aufeinander folgenden Neutroneneinfänge hängt hauptsächlich von der Neutronenintensität und der Dauer des Neutronenblitzes ab. Die kurzlebigen neutronenreichen Uranisotope zerfallen durch mehrfachen  $\beta^-$ -Zerfall in die längstlebigen isobaren Kerne, z. B.



oder



b) Neutroneneinfang bei den bedeutend geringeren Neutronenflüssen in Hochflußkernreaktoren ( $10^{14}$  bis  $10^{16}$  Neutronen/cm<sup>2</sup>·sec). Der Aufbau neutronenreicher Isotope ist hierbei durch den konkurrierenden radioaktiven Zerfall dieser Kerne begrenzt. Daher liegen sämtliche Nuklide, die auf diesem Weg aufgebaut werden, in der Nähe maximaler Kernstabilität. Wegen der kurzen Halbwertszeiten der Isotope der Elemente mit Ordnungszahlen Z über 102 ist nach dieser Methode die Synthese weiterer Elemente nicht möglich. Der Aufbau von Kernen hoher Massenzahl ist ein sehr langwieriger Prozeß. So mußte man, um  $^{257}_{100}\text{Fm}$  in nachweisbaren Mengen (ca. 0,1  $\alpha$ -Zerfälle/min) aufzubauen, eine  $^{242}_{94}\text{Pu}$ - $^{243}_{95}\text{Am}$ - $^{244}_{96}\text{Cm}$ -Probe im „Materials Testing Reactor“ (MTR) für ca. 4 Jahre bei einem Fluß von  $3 \cdot 10^{14}$  Neutronen/cm<sup>2</sup>·sec bestrahlen [4]. Kerne mit Massenzahlen A über 257 wurden noch nicht gefunden.

c) Neutroneneinfang bei Neutronenflüssen von  $10^{19}$  bis  $10^{21}$  Neutronen/cm<sup>2</sup>·sec. Dieser Aufbauprozess entspricht weitgehend den vorstehend geschilderten, verläuft jedoch über Kerne, die etwas weiter vom Bereich maximaler Stabilität entfernt sind. Auf der Erde ließ sich dieser Aufbauprozess, der dem Kernaufbau in den Sternen (r-Prozeß) entspricht [5, 6], noch nicht durchführen, da die erforderlichen hohen Neutronenflüsse mindestens einige Sekunden lang aufrechterhalten werden müssen. Möglicherweise ist diese Reaktion in einigen Jahren mit gepulsten Hochflußreaktoren experimentell zu verwirklichen.

Abbildung 1 zeigt schematisch die zur Zeit auf der Erde durchführbaren drei Aufbauwege 1, 2a und 2b, hier für die Bildung von Fermium-Isotopen (Z = 100).

[\*] Bei der thermonuklearen Explosion „Mike“ am 1. November 1952 auf Bikini bis  $^{255}_{92}\text{U}$  [1], oder beim unterirdischen Anacostia-Experiment im Rahmen des Plowshare-Programms der Vereinigten Staaten am 27. November 1962 bis  $^{254}_{92}\text{U}$  [2, 3].

[1] H. Diamond, P. R. Fields, C. S. Stevens, M. H. Studier, S. M. Fried, M. G. Ingram, D. C. Hess, G. L. Pyle, J. F. Mech, W. M. Manning, A. Ghiorso, S. G. Thompson, G. H. Higgins, G. T. Seaborg, C. I. Browne, H. L. Smith u. R. W. Spence, Physic. Rev. 119, 2000 (1960).

[2] R. W. Hoff u. D. W. Dorn, University of California (Berkeley), Radiation Laboratory, Report UCRL-7314 Rev. I (1963).

[3] R. W. Hoff u. D. W. Dorn, University of California (Berkeley), Radiation Laboratory, Report UCRL-7347 (1963).

[4] E. K. Hulet, R. W. Hoff, J. E. Evans u. R. W. Lougheed, Physic. Rev. Letters 13, 343 (1964).

[5] E. M. Burbridge, G. R. Burbridge, W. A. Fowler u. F. Hoyle, Rev. mod. Physics 29, 547 (1957).

[6] G. R. Burbridge, F. Hoyle, E. M. Burbridge, R. F. Christy u. W. A. Fowler, Physic. Rev. 103, 1145 (1956).

## C. Reaktionen schwerer Kerne beim Beschuß mit schweren Ionen

### I. Zur Herstellung schwerer Ionen hoher Energie

Die ersten Versuche, mehrfach geladene, beschleunigte „schwere“ Ionen zu erzeugen, wurden von Alvarez [7] 1940 unternommen; allerdings konnte er nur einen sehr geringen Ionenstrom von etwa zehn  $^{12}_6\text{C}$ -Ionen pro Sekunde mit einer Energie von 50 MeV erhalten. Die Fortschritte in der Erzeugung beschleunigter schwerer Ionen beruhen nicht nur auf der Energie- und Intensitätszunahme, sondern auch auf der verbesserten Monochromasie der Ionenströme. Die konventionellen Ionenquellen der Zirkularbeschleuniger für leichte Teilchen liefern nur zwei- bis dreifach geladene schwere Ionen. Durch Stöße mit Gasresten im Beschleuniger verlieren diese Ionen weitere Elektronen. Die stärker ionisierten Teilchen werden dann stärker beschleunigt als die weniger geladenen. Das Ergebnis ist eine starke „Energiespreizung“ des Teilchenstroms; sie wird heute vermieden, entweder

1. durch Beschleunigung der Ionen in einem Linearbeschleuniger wie dem „Heavy Ion Linear Accelerator“ (HILAC) in Berkeley/USA, der schwere Ionen auf eine Energie von 10,3 MeV/Nukleon beschleunigt, oder
2. durch Verwendung spezieller Ionenquellen, die einen einheitlich ionisierten Strahl liefern, der im Zirkularbeschleuniger nicht weiter ionisiert wird. So beträgt die maximale Energie des Ionenstrahls des 310-cm-Zyklotrons in Dubna/UdSSR 8,5 MeV/Nukleon, bei einer Halbwertsbreite des 100 MeV  $^{12}_6\text{C}$ -Strahls von ca. 3 MeV [8, 9].

### II. Reaktionen der schweren Ionen mit schweren Targetkernen

Die beim Beschuß von Elementen hoher Ordnungszahl ( $Z > 80$ ) mit schweren Ionen ( $Z > 2$ ) beobachteten Wechselwirkungen lassen sich in Distanz-, Direkt- und Verschmelzungsreaktionen unterteilen [8].

1. Distanzreaktionen, zu denen alle Streuprozesse gehören, sind für die Darstellung der schweren Elemente ohne Bedeutung.
2. Zu den Direktreaktionen gehören z. B. die Übertragungsreaktionen (Transfer reactions), bei denen das Geschoß vom Targetkern einige Nukleonen aufnimmt (Pick-up reactions) oder an diesen abgibt (Stripping reactions) [9, 9a] wie



oder



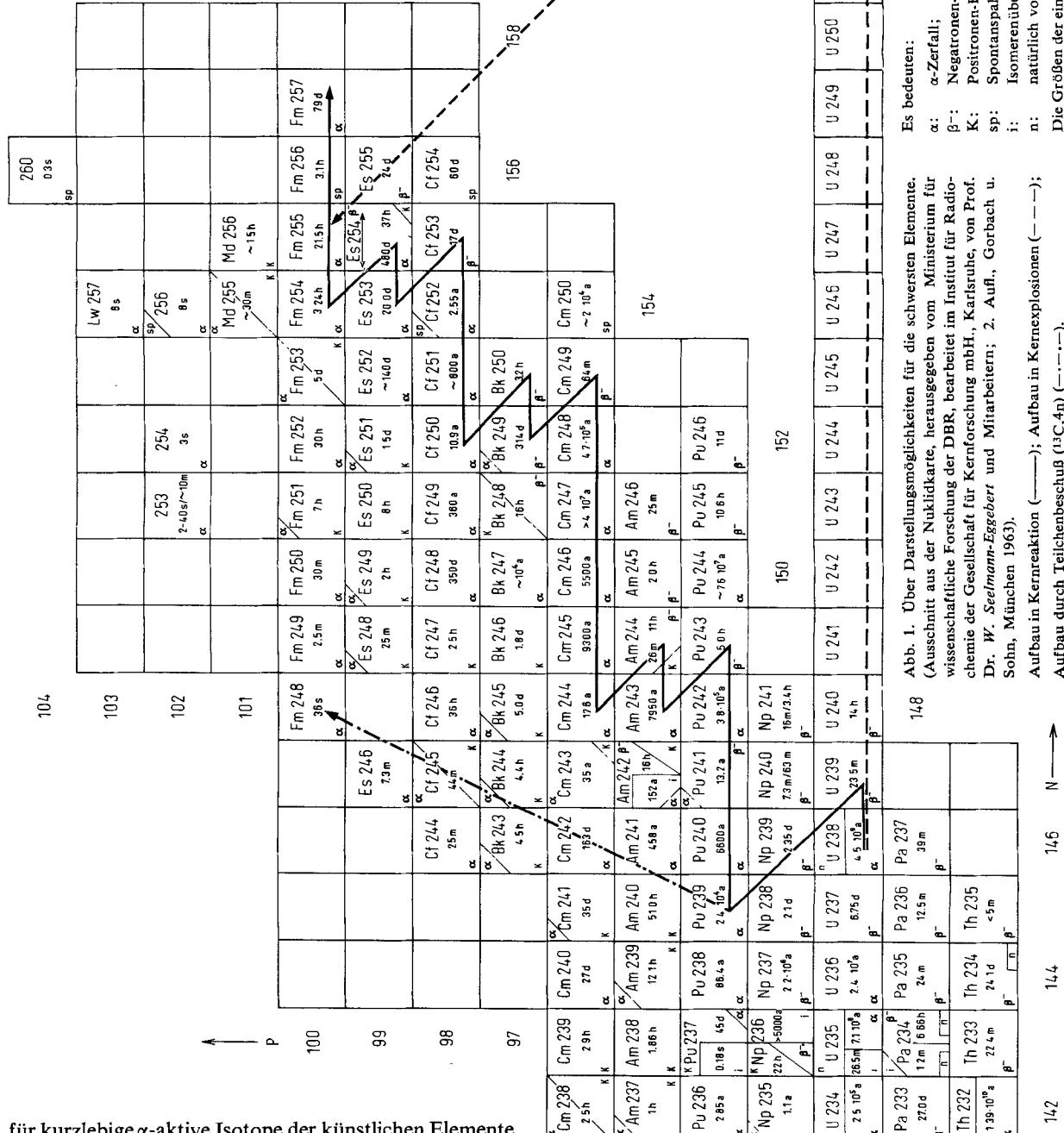
[7] L. W. Alvarez, Physic. Rev. 58, 192 (1940).

[8] G. N. Flerov, Proceedings 2nd International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1958; 14, 151 (1958).

[9] V. V. Volkov, L. Pomorski, J. Tys u. G. N. Flerov, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 15, 442 (1962).

[9a] G. N. Flerov u. V. A. Karnaukhov, Joint Institute of Nuclear Research (Dubna, UdSSR), Preprint D-1798 (1964).

Zu den Direktreaktionen gehören auch solche, bei denen das Geschoß aus dem Targetkern mehrere Nukleonen herausschlägt, ohne sie vollständig einzunehmen [10, 11]. Folgeprodukte der bei derartigen Reaktionen gebildeten Restkerne zerfallen unter  $\alpha$ -Emission ( $\alpha$ -Energie  $\geq 8$  MeV). Ähnliche Zerfallsenergien sind auch von den  $\alpha$ -aktiven schwersten Kernen zu erwarten, die über Verschmelzungsreaktionen und Neutronenverdampfung aus dem Zwischenkern gebildet werden. Die



für kurzlebige  $\alpha$ -aktive Isotope der künstlichen Elemente sehr häufig angewendete Massenzahlzuordnung auf Grund der  $\alpha$ -Zerfallsenergie und der  $\alpha$ -Zerfallssystematik wird daher sehr erschwert [11a, 11b].

[10] H. Kumpf u. E. D. Donets, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 17, 539 (1963).

[11] I. Brandstetr, M. Krzivanek, J. Maly u. Su Chun-Guy, Radiochemie (russ.) 5, 699 (1963).

[11a] *I. Kaplan*, Physic. Rev. 81, 962 (1951).

3. Bei den Verschmelzungsreaktionen bilden sich Zwischenkerne, welche anschließend durch Spaltung oder durch Verdampfen von Nukleonen zerfallen. Unter einem Compoundkern (= Zwischenkern) versteht

[11b] R. A. Glass, S. G. Thompson u. G. T. Seaborg, J. inorg. nuclear Chem. 1, 3 (1955).

man dabei einen quasistationären Kernzustand, dessen Lebensdauer von etwa  $10^{-14}$  sec groß ist im Verhältnis zur Zeit, die ein Geschoß benötigt, um eine Strecke von der Länge des Kerndurchmessers zurückzulegen [12].

Der Ausdruck Zwischenkern (Compoundkern) soll im folgenden stets für das intermediäre Produkt einer Kernreaktion verwendet werden, auch wenn nicht in jedem Einzelfall nachgewiesen wurde, daß der Zwischenkern eine endliche Lebensdauer besitzt und seine Anregungsenergie gleichmäßig auf alle Nukleonen verteilt ist [13]. In neuen Arbeiten [14–17] wird dargelegt, daß für die in Abschnitt III beschriebenen Reaktionsarten die Annahme eines Compound-Kerns allein oft ein zu einfaches Bild für den Reaktionsmechanismus liefert.

### III. Zerfallsarten des Zwischenkerns

#### 1. Spaltung und Verdampfung von Neutronen aus dem Zwischenkern

Beschießt man einen Targetkern hoher Massenzahl mit „schweren“ Ionen einer Energie, die etwas oberhalb der Coulombschwelle (=Coulombsche Abstoßungsenergie) liegt, so werden die schweren Ionen etwa mit Wirkungsquerschnitten von der Größe des geometrischen Kernquerschnitts eingefangen. Hierbei entsteht ein Zwischenkern mit einer Anregungsenergie  $E_A$ , die etwa der halben kinetischen Energie des eingefangen Projektils entspricht. Die Anregungsenergie wird durch Verdampfen von Nukleonen oder durch Spaltung abgegeben. Bei den schweren Kernen mit niedrigen Spaltungsenergien herrscht die Spaltung vor, so daß die Wirkungsquerschnitte der Kernaufbaureaktionen sehr klein sind. Der experimentell ermittelte Wirkungsquerschnitt  $\sigma_c$  für die Compoundkern-Bildung stimmt innerhalb 15 % mit dem überein, der sich mit der von *Druin* [18] abgeänderten Formel (1) von *Blatt* und *Weisskopf* [19] berechnen läßt.

$$\sigma_c = \pi \cdot r_0^2 \cdot (A_T^{1/3} + A_P^{1/3})^2 (1 - E_C/E) \quad (1)$$

Hierbei bedeuten  $A_T$  und  $A_P$  die Massenzahlen des Targetkerns bzw. des Projektils,  $E$  die Energie des Geschoßteilchens und  $E_C$  die nach Gleichung (2) berechnete Coulombschwelle

$$E_C = \frac{Z_T \cdot Z_P \cdot e^2}{r_0 (A_T^{1/3} + A_P^{1/3})} \frac{A_T + A_P}{A_T} \quad (2)$$

der jeweiligen Kernreaktion ( $Z_T, Z_P$ : Kernladung des Targetkerns bzw. des Projektils). Eine befriedigende Übereinstimmung der Wirkungsquerschnitte erhält man jedoch nur für  $E > 1,2 E_C$ . Für  $r_0$ , den Nukleonenradius, wird meist  $1,5 \cdot 10^{-13}$  cm gesetzt.

Zwischen  $\sigma_c$  und dem Wirkungsquerschnitt  $\sigma_f$  für die Spaltung besteht der Zusammenhang (3)

$$\sigma_f = W_f \cdot \sigma_c, \quad (3)$$

[12] N. Bohr, Nature (London) 137, 344 (1936).

[13] A. Zucker, Annu. Rev. nuclear Sci. 10, 27 (1960).

[14] A. B. Smith, P. R. Fields u. A. Friedman, Physic. Rev. 104, 699 (1956).

[15] T. Sikkeland, E. L. Haines u. V. Viola, Physic. Rev. 125, 1350 (1962).

[16] H. C. Britt u. A. R. Quinton, Physic. Rev. 124, 877 (1961).

[17] R. Kaufmann u. R. Wolfgang, Physic. Rev. 121, 192 (1961).

[18] V. A. Druin, S. M. Polikanov u. G. N. Flerov, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 5, 1059 (1957).

wobei  $W_f$  die Wahrscheinlichkeit für die Spaltung des Compound-Kerns ist. Sowohl mit der Kernladungszahl des Zwischenkerns (etwa proportional  $Z^2/A$ ) als auch mit dessen Anregungsenergie nimmt  $W_f$  stark zu [18, 20, 21]. Bei Massenzahlen  $A > 220$  ist  $W_f$  schon bei Anregungsenergien des Zwischenkerns von etwa 30 MeV fast gleich eins. Das bedeutet, daß der Zwischenkern fast ausschließlich durch Spaltung zerfällt und daß die Wirkungsquerschnitte für die Verdampfung leichter Teilchen aus dem Zwischenkern äußerst gering sind. Dies zeigt Abbildung 2 für die Bildung von Fermium-Isotopen [22], die durch Beschuß von  $^{238}_{92}\text{U}$  mit  $^{16}_8\text{O}$ -Ionen über den Zwischenkern  $^{254}_{100}\text{Fm}$  und dessen Zerfall durch Neutronen-Emission gebildet werden.

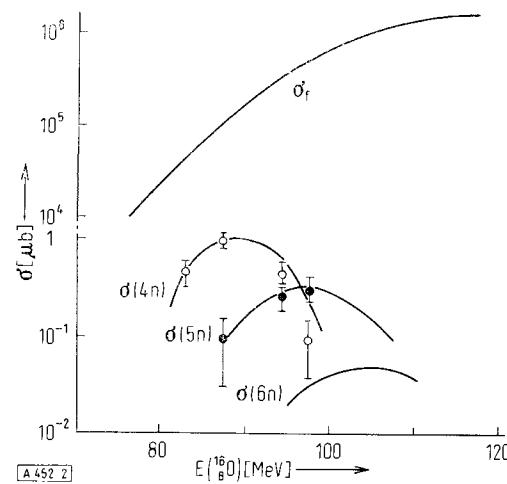


Abb. 2. Wirkungsquerschnitte beim Beschuß von  $^{238}_{92}\text{U}$  mit  $^{16}_8\text{O}$  für die Spaltung und  $(^{16}_8\text{O}, \text{xn})$ -Reaktionen als Funktion der Geschossenergie. (Die ausgezogenen Kurven gelten für berechnete Wirkungsquerschnitte.)

*Jackson* [23] konnte zeigen, daß die Wirkungsquerschnitte für  $(p, \text{xn})$ -Reaktionen sowohl für Blei als auch für Wismut gut mit berechneten Wirkungsquerschnitten übereinstimmen, die nach einem vereinfachten Verdampfungsmodell unter Annahme einer konstanten Kerntemperatur erhalten wurden. Diese Kerntemperatur berechnet sich aus der Anregungsenergie  $E_A$  des Kerns gemäß Gleichung (4)

$$T = (a \cdot E_A)^{1/2} \quad (4)$$

(der Wert der Konstanten  $a$  wird allgemein zu 0,1 angenommen [18]). Das Jacksonsche Kernmodell gilt auch für Reaktionen mit schweren Ionen, wie sich durch Vergleich der in Abbildung 2 aufgeführten berechneten und gemessenen Wirkungsquerschnitte für die  $(^{16}_8\text{O}, \text{xn})$ -Reaktionen zeigen läßt. Zur Berechnung von  $\sigma(X, \text{xn})$  wurde eine Kerntemperatur  $T$  von 1,6 MeV vorgegeben. Aus Abbildung 2 geht weiter hervor, daß man für eine möglichst hohe Ausbeute an schweren Kernen Geschossener-

[19] J. M. Blatt u. V. F. Weisskopf: Theoretical Nuclear Physics. Wiley, New York 1952, Kap. VIII.

[20] J. R. Huizenga, Conference on „Reactions between Complex Nuclei“, Gatlinburg, Tenn. (USA), 1958; Report ORNL-2606 (1958).

[21] N. I. Tarantin, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 10, 250 (1960).

[22] V. P. Pereygin, E. D. Donets u. G. N. Flerov, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 10, 1106 (1960).

[23] J. D. Jackson, Canad. J. Physics 34, 767 (1956).

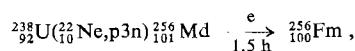
gien verwenden muß, die nur wenig – 10 bis 20 MeV, je nach Reaktionstyp – oberhalb der Coulombschwelle liegen.

## 2. Verdampfen leichter geladener Teilchen aus dem Zwischenkern

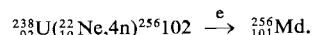
Mit der Projektilenergie nimmt nicht nur  $W_f$  zu, sondern auch die Wahrscheinlichkeit für die Verdampfung leichter geladener Teilchen aus dem Zwischenkern, so daß die Wirkungsquerschnitte für derartige Kernreaktionen mit denen für die Neutronenverdampfung vergleichbar werden. Dies erschwert die Deutung der Meßergebnisse zusätzlich, wie folgendes Beispiel zeigt:

Beim Beschuß von  $^{238}\text{U}$  mit  $^{22}\text{Ne}$ -Ionen ( $E > 100$  MeV) wurde die Bildung von  $^{256}\text{Md}$  festgestellt [24–26], welches durch den genetischen Zusammenhang mit seinem durch Spontanspaltung [\*] zerfallenden Tochterkern  $^{256}\text{Fm}$  identifiziert wurde.  $^{256}\text{Md}$  kann auf zwei Weisen entstehen:

a) direkt durch die Kernreaktion



b) oder indirekt sekundär durch den Zerfall von  $^{256}\text{I}^{102}$  über einen Elektroneneinfang gemäß



Es konnte noch nicht geklärt werden, welcher Weg zutrifft. Die direkte Bildung (Reaktion a) ist jedoch wahrscheinlicher, da das Maximum der  $^{256}\text{Md}$ -Ausbeutekurve bei einer Projektilenergie liegt, die – bezogen auf die Coulombschwelle – um etwa 15 MeV zu höheren Energien hin verschoben ist als bei den bisher bekannten Reaktionen des Typs ( $^{22}\text{Ne},\text{4n}$ ) [das Ausbeutemaximum für  $^{256}\text{Md}$  liegt bei 128 MeV, das der Reaktion  $^{242}\text{Pu}(\text{p},\text{n})^{260}\text{Md}$  bei 113 MeV]. Diese Verschiebung des maximalen Wirkungsquerschnitts stimmt auch gut mit der Verdampfungswahrscheinlichkeit eines Protons aus schweren Zwischenkernen überein, für die der Potentialwall etwa 14 MeV beträgt. Weiterhin wurde für  $^{256}\text{I}^{102}$  auch noch kein Zerfall durch Elektroneneinfang festgestellt [27, 28]. Eine Entscheidung, welcher der beiden Reaktionswege zu dem bereits auch chemisch rein abgetrennten [26, 29, 29a]  $^{256}\text{Md}$  führt, ist sowohl wegen der kurzen Halbwertszeit des möglichen Zwischenprodukts  $^{256}\text{I}^{102}$  ( $\tau_{1/2} = 8$  sec) als auch wegen seines kleinen Bildungsquerschnitts von  $\sigma_{\max} \approx 2 \cdot 10^{-9}$  b sehr schwierig. So bedeutet ein Wirkungsquerschnitt von  $2 \cdot 10^{-9}$  b, daß bei 3-stündiger Bestrahlung einer dünnen [\*\*] Uranfolie

[24] V. A. Druin, Joint Institute of Nuclear Research (Dubna, UdSSR), Preprint R-874 (1962) und KFK-tr-151 (1964).

[25] V. A. Druin, Nukleonika (Warszawa) 7, 473 (1962).

[26] J. Maly u. J. Brandstetr, Chem. Listy 58, 751 (1964).

[\*] Unter Spontanspaltung versteht man den radioaktiven Selbstzerfall schwerer Atomkerne in zwei Bruchstücke ohne äußere Beeinflussung. Die Spontanspaltung gehorcht daher wie alle anderen Zerfallsarten den statistischen Gesetzen der Radioaktivität.

[27] E. D. Donets, V. A. Shchegolev u. V. A. Ermakov, Joint Institute of Nuclear Research (Dubna, UdSSR), Preprint R-1383 (1963).

[28] E. Donets, V. A. Shchegolev u. V. A. Ermakov, Atomenergie (russ.) 16, 195 (1964).

[29] H. Beranova, J. Brandstetr, V. Druin, V. Jermakov, M. Kryraneck, J. Maly, S. Polikanov u. Su Chun-Guy, Nukleonika (Warszawa) 7, 465 (1962).

[29a] J. Brandstetr, W. Tung-Seng, K. A. Gravrilov, E. Gwusd, J. Maly u. M. Taube, Radiochemie (russ.) 6, 26 (1964).

[\*\*] D. h. die Folie ist dünner oder vergleichbar dünn mit der Reichweite des Rückstoßkerns, und die neu gebildeten Atome

mit einem  $^{22}\text{Ne}$ -Ionen-Strom von  $3 \mu\text{A}$  (ca.  $2 \cdot 10^{12} \text{ }^{22}\text{Ne}^{8+}$ -Ionen pro Sekunde) nur  $25 \text{ }^{256}\text{Md}$ -Kerne entstehen. Das gefundene  $^{256}\text{Fm}$  kann nicht durch die Reaktionen ( $^{22}\text{Ne},\alpha$ ) oder ( $^{22}\text{Ne},2\text{p}2\text{n}$ ) gebildet worden sein, da die Wirkungsquerschnitte für diese Reaktionen sicher kleiner als  $5 \cdot 10^{-11}$  b sind. Abbildung 3 zeigt für die Reaktionen ( $^{12}\text{C},\text{xn}$ ) und ( $^{12}\text{C},\alpha\text{xn}$ ) die Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte beim Beschuß von  $^{238}\text{U}$  [30]. Die Anregungsfunktionen für die Neutronenverdampfung besitzen sowohl die typische Form als auch Lage des Maximums, die für eine Reaktion über einen Zwischenkern zu erwarten ist. Dagegen setzt sich die ( $^{12}\text{C},\alpha\text{4n}$ )-Kurve zumindest aus zwei Komponenten zusammen. Die scharfe

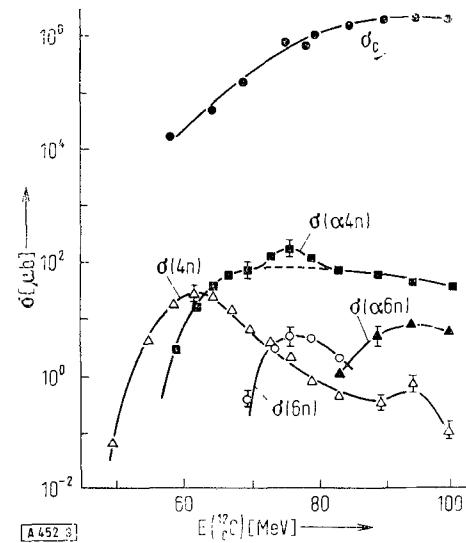


Abb. 3. Wirkungsquerschnitte für die Kernreaktionen ( $^{12}\text{C},\text{xn}$ ) und ( $^{12}\text{C},\alpha\text{xn}$ ) mit  $^{238}\text{U}$  als Target-Kern in Abhängigkeit von der Geschossenergie.

Spitze bei 76 MeV scheint ebenfalls für eine Reaktion über einen Compoundkern zu sprechen, während die breite Bande durch andere Reaktionen verursacht wird. Die wahrscheinlichste – allerdings nicht bewiesene – Annahme ist, daß das  $^{12}\text{C}$ -Ion unter dem Einfluß der Kernkräfte in Kernnähe in  $^4\text{He} + ^8\text{Be}$  zerfällt.

Durch gewisse Orientierungen der Kerne zueinander könnte ein Einfang von  $^8\text{Be}$  bevorzugt werden, während das  $\alpha$ -Teilchen nicht eingefangen werden würde, d.h. die eigentliche Reaktion wäre ein  $^{238}\text{U} + ^8\text{Be} \rightarrow ^{242}\text{Cm}$ -Prozeß. Da das eintretende  $^8\text{Be}$  verschiedene große Anteile der  $^{12}\text{C}$ -Gesamtenergie übernehmen könnte, ließe sich so das breite Maximum des ( $^{12}\text{C},\alpha\text{4n}$ )-Reaktionsquerschnitts erklären. Die erwähnte  $^{12}\text{C}$ -Aufspaltung in Kernphotoplatten ist schon beobachtet worden [31].

## IV. Über die günstigste Kombination von Targetkern und Projektilart zum Aufbau schwerer Kerne

Aus der in Tabelle 1 gegebenen Übersicht der bisher durch Kernreaktionen mit schweren Ionen erzeugten Isotope der Transcurium-Elemente ist zu ersehen, daß sich die Mehrzahl der Nuklide durch verschiedene Re-

können aus der Folie herausgeschlagen werden. Bei einer „dicken“ Folie bleiben die neu gebildeten Atome in der Folie stecken.

[30] T. Sikkeland, S. J. Thompson u. A. Ghiorso, Physic. Rev. 112, 543 (1958).

[31] J. F. Miller, University of California (Berkeley), Radiation Laboratory, Report UCRL-1902 (1952).

aktionen darstellen läßt. Zur Synthese noch schwererer Kerne erhebt sich die Frage, welche Ausgangskern/Geschoß-Kombination für einen bestimmten Endkern den größten Wirkungsquerschnitt besitzt. So bildet sich beispielsweise  $^{250}_{100}\text{Fm}$  durch Emission von vier Neutronen aus dem gleichen Zwischenkern  $^{100}\text{Fm}$ , der durch die Reaktionen  $^{232}_{90}\text{Th} + ^{22}_{10}\text{Ne}$ ,  $^{238}_{92}\text{U} + ^{16}_8\text{O}$  und  $^{241}_{94}\text{Pu} + ^{13}_6\text{C}$  erzeugt werden kann. Abbildung 4 zeigt eine graphische Darstellung der Wirkungsquerschnitte für die Bildung von  $^{250}_{100}\text{Fm}$  durch diese Kernreaktionen. Es ist daraus zu ersehen, daß die Kombination Ausgangskern mit hoher

Tabelle 1. Durch Kernreaktionen mit schweren Ionen bisher dargestellte Isotope der Transcurium-Elemente.  
( $\sigma_{\max}$  = maximaler Wirkungsquerschnitt).

Isotop	Kernreaktion	$\sigma_{\max}$ [μb]	E [MeV]	Lit.
$^{243}_{97}\text{Bk}$	$^{238}_{92}\text{U}(^{14}_7\text{N}, \alpha 5n)^{243}_{97}\text{Bk}$			[32]
$^{244}_{98}\text{Cf}$	$^{237}_{93}\text{Np}(^{11}_5\text{B}, 4n)^{244}_{98}\text{Cf}$	3	50–55	[32a]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{12}_6\text{C}, 6n)^{244}_{98}\text{Cf}$	7	75	[30, 33]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{14}_7\text{N}, p7n)^{244}_{98}\text{Cf}$			[32]
$^{245}_{98}\text{Cf}$	$^{238}_{92}\text{U}(^{12}_6\text{C}, 5n)^{245}_{98}\text{Cf}$	90	78	[34–36]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{12}_6\text{C}, 6n)^{245}_{98}\text{Cf}$			[35, 36]
	$^{241}_{95}\text{Am}(^{16}_8\text{O}, ^{10}_5\text{B}2n)^{245}_{98}\text{Cf}$	30	80	[37]
	$^{246}_{96}\text{Cm}(^{12}_6\text{C}, ^{8}_4\text{Be}3n)^{245}_{98}\text{Cf}$			[37]
	$^{246}_{96}\text{Cm}(^{13}_6\text{C}, ^{8}_4\text{Be}4n)^{245}_{98}\text{Cf}$	100	110	[37]
	$^{246}_{96}\text{Cm}(^{18}_8\text{O}, ^{12}_6\text{C}3n)^{245}_{98}\text{Cf}$	350	83	[37]
$^{246}_{98}\text{Cf}$	$^{232}_{90}\text{Th}(^{18}_8\text{O}, 4n)^{246}_{98}\text{Cf}$	7		[38]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{12}_6\text{C}, 4n)^{246}_{98}\text{Cf}$	60	66	[35]
		30	64	[30, 33, 34, 36]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{13}_6\text{C}, 5n)^{246}_{98}\text{Cf}$	130	78	[35, 36]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{14}_7\text{N}, p5n)^{246}_{98}\text{Cf}$			[32]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{16}_8\text{O}, \alpha 4n)^{246}_{98}\text{Cf}$	8		[38]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{20}_8\text{Ne}, 2\alpha 4n)^{246}_{98}\text{Cf}$			[28]
	$^{241}_{95}\text{Am}(^{16}_8\text{O}, ^{10}_5\text{B}n)^{246}_{98}\text{Cf}$	3	80	[37]
	$^{246}_{96}\text{Cm}(^{12}_6\text{C}, ^{8}_4\text{Be}2n)^{246}_{98}\text{Cf}$			[37]
	$^{246}_{96}\text{Cm}(^{13}_6\text{C}, ^{8}_4\text{Be}3n)^{246}_{98}\text{Cf}$	300	110	[37]
	$^{246}_{96}\text{Cm}(^{18}_8\text{O}, ^{12}_6\text{C}2n)^{246}_{98}\text{Cf}$	900	88	[37]
$^{247}_{98}\text{Cf}$	$^{238}_{92}\text{U}(^{14}_7\text{N}, p4n)^{247}_{98}\text{Cf}$			[32]
$^{248}_{98}\text{Cf}$	$^{238}_{92}\text{U}(^{14}_7\text{N}, p3n)^{248}_{98}\text{Cf}$			[32]
$^{245}_{99}\text{Es}$	$^{237}_{93}\text{Np}(^{12}_6\text{C}, 4n)^{245}_{99}\text{Es}$			[39]
	$^{240}_{94}\text{Pu}(\text{B}, xn)^{245}_{99}\text{Es}$			[39]
$^{246}_{99}\text{Es}$	$^{238}_{92}\text{U}(^{14}_7\text{N}, 6n)^{246}_{99}\text{Es}$			[32]
$^{247}_{99}\text{Es}$	$^{238}_{92}\text{U}(^{14}_7\text{N}, 5n)^{247}_{99}\text{Es}$			[32]
$^{248}_{100}\text{Fm}$	$^{240}_{94}\text{Pu}(^{12}_6\text{C}, 4n)^{248}_{100}\text{Fm}$	0,5	70	[32a, 40]
	$^{241}_{95}\text{Am}(^{11}_5\text{B}, 4n)^{248}_{100}\text{Fm}$	0,9	50–55	[32a]
$^{249}_{100}\text{Fm}$	$^{238}_{92}\text{U}(^{18}_8\text{O}, 5n)^{249}_{100}\text{Fm}$	0,4	98	[22]
$^{250}_{100}\text{Fm}$	$^{232}_{90}\text{Th}(^{22}_8\text{Ne}, 4n)^{250}_{100}\text{Fm}$	0,3		[38]
		0,25	106	[41]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{16}_8\text{O}, 4n)^{250}_{100}\text{Fm}$	1	88	[22, 38, 42, 43]
	$^{238}_{92}\text{U}(^{20}_8\text{Ne}, \alpha 4n)^{250}_{100}\text{Fm}$			[28]
	$^{241}_{94}\text{Pu}(^{13}_6\text{C}, 4n)^{250}_{100}\text{Fm}$	6	68	[42]
	$^{242}_{94}\text{Pu}(^{12}_6\text{C}, 4n)^{250}_{100}\text{Fm}$	10	65	[30]
	$^{243}_{95}\text{Am}(^{11}_5\text{B}, 4n)^{250}_{100}\text{Fm}$	10	50–55	[32a]
	$^{244}_{96}\text{Cm}(^{18}_8\text{O}, ^{8}_4\text{Be}2n)^{250}_{100}\text{Fm}$	1		[37]
	$^{244}_{96}\text{Cm}(^{12}_6\text{C}, \alpha 2n)^{250}_{100}\text{Fm}$			[39]
$^{252}_{100}\text{Fm}$	$^{238}_{92}\text{U}(^{22}_8\text{Ne}, \alpha 4n)^{252}_{100}\text{Fm}$	0,2	123	[28, 38]
	$^{250}_{98}\text{Cf}(^{4}_2\text{Be}, \alpha 3n)^{252}_{100}\text{Fm}$			[39]
$^{256}_{101}\text{Md}$	$^{242}_{94}\text{Pu}(^{18}_8\text{O}, p3n)^{256}_{101}\text{Md}$	0,002	125–130	[24, 25, 45]
	$^{241}_{94}\text{Pu}(^{16}_8\text{O}, 4n)^{253}_{102}$	0,005	100	[46–48]
$^{254}_{102}\text{Lw}$	$^{246}_{96}\text{Cm}(^{13}_6\text{C}, 5n)^{254}_{102}$			[49]
	$^{246}_{96}\text{Cm}(^{12}_6\text{C}, 4n)^{254}_{102}$	0,6	70 ± 5	[32a, 40]
	$^{252}_{98}\text{Cf}(^{10}_8\text{B}, p6n)^{255}_{102}$			[39]
$^{256}_{102}\text{Lw}$	$^{238}_{92}\text{U}(^{22}_8\text{Ne}, 4n)^{256}_{102}$	0,045	112	[27, 28]
$^{257}_{103}\text{Lw}$	$^{249–257}_{94}\text{Cf}(^{10, 11}_8\text{B}, xn)^{257}_{103}\text{Lw}$			[50]
$^{260}_{104}$	$^{242}_{94}\text{Pu}(^{22}_8\text{Ne}, 4n)^{260}_{104}$	1,5–10–4	113	[44, 45]

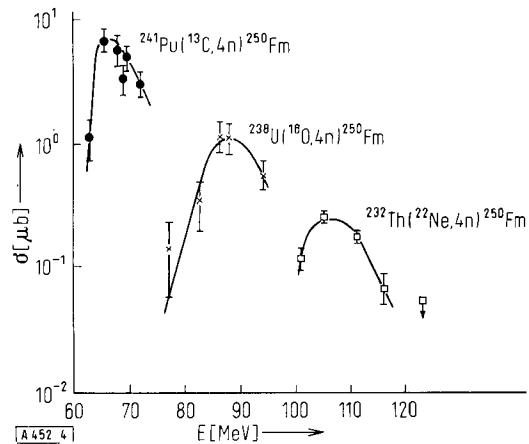


Abb. 4. Wirkungsquerschnitte für die Bildung von  $^{250}_{100}\text{Fm}$  über  $(\text{X}, 4n)$ -Reaktionen in Abhängigkeit von der Geschoßenergie.

- [32] A. Ghiorso, G. B. Rossi, B. G. Harvey u. S. G. Thompson, Physic. Rev. 93, 257 (1954).
- [32a] A. Ghiorso u. T. Sikkeland referiert in E. K. Hyde, I. Perlman u. G. T. Seaborg: The Nuclear Properties of the Heavy Elements I. Prentice Hall, Englewood Cliffs, N. J., 1964.
- [33] A. Ghiorso, S. G. Thompson, K. Street u. G. T. Seaborg, Physic. Rev. 81, 154 (1951).
- [34] J. B. Gerlit, L. J. Guseva, B. F. Miasoedov, N. J. Tarantin, K. V. Filippova u. G. N. Flerov, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theor. Physik (russ.)] 6, 263 (1958).
- [35] V. V. Volkov, L. J. Guseva, A. S. Pasyuk, N. J. Tarantin u. K. V. Filippova, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theor. Physik (russ.)] 9, 536 (1959).
- [36] J. H. Fremlin, K. M. Glover u. J. Milsted, J. inorg. nuclear Chem. 2, 263 (1956).
- [37] A. Ghiorso u. T. Sikkeland, Proceedings 2nd International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1958; P/2440.
- [38] I. Branstetr, V. V. Volkov, V. A. Ermakov, T. S. Zvarova, M. Krzivanek, J. Maly u. Su Chun-Guy, Radiochemie (russ.) 5, 706 (1964).
- [39] G. T. Seaborg: Man Made Transuranium Elements. Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs, N. Y., 1963, S. 110.
- [40] A. Ghiorso, T. Sikkeland, J. R. Walton u. G. T. Seaborg, Physic. Rev. Letters 1, 18 (1958).
- [41] E. D. Donets, V. A. Karnaughov, G. Kumpf, B. A. Gvozdev u. Y. T. Chuburkov, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theor. Physik (russ.)] 16, 7 (1963).
- [42] V. V. Volkov, L. I. Guseva, B. F. Myasoedov, N. J. Tarantin u. K. V. Filippova, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theor. Physik (russ.)] 10, 859 (1960).
- [43] H. Atterling, W. Forsling, L. W. Holm, L. Melander u. B. Aström, Physic. Rev. 95, 585 (1954).
- [44] G. N. Flerov, Y. T. Oganessian, Y. V. Lobanov, V. I. Kusnezov, V. A. Druin, V. P. Pereygin, K. A. Gavrilov, S. P. Tretjakova u. V. M. Plotko, Physics Letters 13, 73 (1964).
- [45] G. N. Flerov, Y. T. Oganessian, Y. V. Lobanov, V. I. Kusnezov, V. A. Druin, V. P. Pereygin, K. A. Gavrilov, S. P. Tretjakova u. V. M. Plotko, Joint Institute of Nuclear Research (Dubna, UdSSR), Preprint D-1818 (1964).
- [46] G. N. Flerov, S. M. Polikanov, A. S. Karamyan, A. S. Payuk, D. M. Parfanovich, N. J. Tarantin, V. A. Karnaughov, V. A. Druin, V. V. Volkov, A. M. Semchinova, Y. T. Oganessian, V. I. Khalizov, G. I. Khlebnikov, B. F. Myasoedov u. K. A. Gavrilov, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theor. Physik (russ.)] 11, 61 (1960).
- [47] G. N. Flerov, A. S. Karamyan, A. S. Pasyuk, D. M. Karanovich, S. M. Polikanov, N. I. Tarantin, V. A. Karnaughov, V. A. Druin, V. V. Volkov, A. M. Semchinova, Y. T. Oganessian, V. J. Khalizer u. G. I. Khlebnikov, Sov. Phys. Dokl. [engl. Übersetzung aus Ber. Akad. Wiss. UdSSR] 3, 546 (1958).
- [48] G. N. Flerov, Proceedings 2nd International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Geneva 1958; P/2299/Add. 1.
- [49] A. Ghiorso, Proceedings of the „Conference on Reactions between Complex Nuclei“, Gatlinburg, Tenn. (USA), 1958; Report ORNL-2606 (1958).
- [50] A. Ghiorso, T. Sikkeland, A. E. Larsh u. R. M. Latimer, Physic. Rev. Letters 6, 473 (1961).

Kernladungszahl plus Geschoß mit kleiner Kernladungszahl die höchste Ausbeute ergibt. Diese Tatsache ist verständlich, da bei Kernreaktionen mit schweren Teilchen zur Überwindung des höheren Coulombwalls eine größere Projektilenergie benötigt wird, was zu einer höheren Anregung des Zwischenkerns führt. Dies bedingt seinerseits eine höhere Wahrscheinlichkeit der Compoundkern-Spaltung, da nach *Vandenbosch* und *Seaborg* [51] bei einer Erhöhung der Anregungsenergie eines schweren Kerns um 0,13 MeV die Wahrscheinlichkeit der Spaltung um den Faktor 10 zunimmt.

Um den Einfluß des Targetnuklids und der Projektilart auf die Ausbeute an schweren Kernen zu verdeutlichen, sind in Tabelle 2 die maximalen Wirkungsquerschnitte für Kernreaktionen angegeben, bei denen entweder nur das Targetnuklid oder nur das Geschoßteilchen geändert wurde. Es zeigt sich eindeutig, daß eine Erhöhung der Kernladung – sei es im Targetkern oder im Projektil – eine Abnahme des maximalen Wirkungsquer-

Tabelle 2. Maximale Wirkungsquerschnitte für die Bildung schwerer Kerne bei verschiedenen Target-Geschoß-Kombinationen.

Target	Geschoß	Reaktion	Produkt	$\sigma_{\max}$ [ $\mu\text{b}$ ]	E [MeV]
$^{238}_{92}\text{U}$	$^{12}_6\text{C}$	( $^{12}_6\text{C}, 4n$ )	$^{246}_{98}\text{Cf}$ [a]	30; 60 [d]	66
$^{238}_{92}\text{U}$	$^{16}_8\text{O}$	( $^{16}_8\text{O}, 4n$ )	$^{250}_{100}\text{Fm}$ [b]	1	88
$^{238}_{92}\text{U}$	$^{22}_{10}\text{Ne}$	( $^{22}_{10}\text{Ne}, 4n$ )	$^{256}_{98}102$ [c]	0,045	112
$^{238}_{92}\text{U}$	$^{13}_6\text{C}$	( $^{13}_6\text{C}, 5n$ )	$^{246}_{98}\text{Cf}$	130	78
$^{238}_{92}\text{U}$	$^{12}_6\text{C}$	( $^{12}_6\text{C}, \alpha, 4n$ )	$^{242}_{96}\text{Cm}$	100	76
$^{238}_{92}\text{U}$	$^{16}_8\text{O}$	( $^{16}_8\text{O}, \alpha, 4n$ )	$^{246}_{98}\text{Cf}$	10	105
$^{238}_{92}\text{U}$	$^{22}_{10}\text{Ne}$	( $^{22}_{10}\text{Ne}, \alpha, 4n$ )	$^{252}_{100}\text{Fm}$	0,2	150
$^{232}_{90}\text{Th}$	$^{12}_6\text{C}$	( $^{12}_6\text{C}, 4n$ )	$^{240}_{96}\text{Cm}$	80	68
$^{242}_{94}\text{Pu}$	$^{12}_6\text{C}$	( $^{12}_6\text{C}, 4n$ )	$^{250}_{100}\text{Fm}$	9	65
$^{246}_{96}\text{Cm}$	$^{12}_6\text{C}$	( $^{12}_6\text{C}, 4n$ )	$^{254}_{98}102$	2	70

[a]  $\sigma_f = 40 \cdot 10^3 \mu\text{b}$ ;  $\sigma_f/\sigma(X, 4n) \approx 10^3$ .

[b]  $\sigma_f = 10^5 \mu\text{b}$ ;  $\sigma_f/\sigma(X, 4n) \approx 10^5$ .

[c]  $\sigma_f = 10^5 \mu\text{b}$ ;  $\sigma_f/\sigma(X, 4n) \approx 2 \cdot 10^6$ .

[d] Werte nach verschiedenen Autoren.

schnitts bewirkt; eine Erhöhung der Ladung des Projektilkerns wirkt sich dabei bedeutend stärker aus. Vergleicht man Kernreaktionen, bei denen nur Neutronen verdampft werden, so zeigt sich, daß der maximale Wirkungsquerschnitt für die ( $X, 4n$ )-Reaktion in den meisten Fällen den größten Wert besitzt (vgl. Abb. 2).

## V. Durch Spontanspaltung zerfallende metastabile Kernzustände

Der erste Nachweis eines metastabilen Kerns, der durch Spontanspaltung zerfällt, gelang einer Forschergruppe in Dubna/UdSSR [52–54]. Diese fand beim Beschuß von  $^{241}_{95}\text{Am}$  und  $^{239-242}_{94}\text{Pu}$  mit  $\alpha$ -Teilchen, von  $^{243}_{95}\text{Am}$

[51] R. Vandenbosch u. G. T. Seaborg, Physic. Rev. 110, 507 (1958).

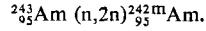
[52] S. M. Polikanov, V. A. Druin, V. A. Karnaukhov, V. L. Mikheev, A. A. Pleve, N. N. Skobelev, V. G. Subbotin, G. M. Ter-Akopyan u. V. A. Formichev, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 15, 1016 (1962).

[53] S. M. Polikanov, Wang T'Ung-Sen, Chr. Keck, V. L. Mikheev, Y. T. Oganesyan, A. A. Pleve u. B. V. Fefilov, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 17, 544 (1963).

[54] G. N. Flerov, S. M. Polikanov, K. A. Gavrilov, V. L. Mikheev, V. P. Pereygin u. A. A. Pleve, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 18, 964 (1964).

mit  $\alpha$ -Teilchen und Deuteronen, von  $^{240-242}_{94}\text{Pu}$  mit Deuteronen, von  $^{238}_{92}\text{U}$  mit  $^{22}_{10}\text{Ne}$ ,  $^{16}_8\text{O}$ ,  $^{11}_5\text{B}$  und  $^{10}_5\text{B}$ , von  $^{235}_{92}\text{U}$  mit  $^{16}_8\text{O}$  sowie von  $^{232}_{92}\text{Th}$  und  $^{242}_{94}\text{Pu}$  mit  $^{10}_{10}\text{Ne}$  einen durch Spontanspaltung zerfallenden metastabilen Kernzustand des  $^{242}_{95}\text{Am}$  mit einer Halbwertszeit von  $\tau_{sp} = 15 \pm 2$  msec. Aus der Halbwertszeit ergibt sich, daß der metastabile Kernzustand von  $^{242}_{95}\text{Am}$  eine im Vergleich zum Grundzustand um mindestens den Faktor 10<sup>20</sup> kleinere Halbwertszeit der Spontanspaltung besitzt, woraus sich auf eine Anregungsenergie von etwa 3 MeV schließen läßt.

Bei den zu  $^{242}_{95}\text{Am}$  führenden Kernreaktionen des Urans und Thoriums mit schweren Ionen handelt es sich um Stripping-Reaktionen (vgl. Abschn. II) und nicht um Reaktionen über einen Zwischenkern. Die Wirkungsquerschnitte dieser Reaktionen hängen dabei in geringerem Maß von der Art des Geschoßteilchens [ $\sigma(^{238}_{92}\text{U} + ^{22}_{10}\text{Ne}) \approx \sigma(^{238}_{92}\text{U} + ^{16}_8\text{O})$ ], aber stärker von der Art des Targetkerns [ $\sigma(^{238}_{92}\text{U} + ^{16}_8\text{O})/\sigma(^{235}_{92}\text{U} + ^{16}_8\text{O}) \approx 10$ ] ab, als sich für Reaktionen über einen Compoundkern erwarten läßt. Die maximalen Wirkungsquerschnitte liegen für Projektilenergien von 100 bis 125 MeV bei  $2 \cdot 10^{-2}$  bis  $4 \cdot 10^{-2} \mu\text{b}$ ; das entspricht der Bildung von 10 bis 20 spontanspaltenden  $^{242}_{95}\text{Am}$ -Kernen pro  $\mu\text{Ah}$ . Der durch Spontanspaltung zerfallende metastabile  $^{242}_{95}\text{Am}$ -Kernzustand entsteht ebenfalls durch Beschuß von  $^{243}_{95}\text{Am}$  mit schnellen Neutronen ( $\sigma_{\max} = 0,15 \text{ mb}$ ) [55] über die Reaktion:



Beim Beschuß von  $^{238}_{92}\text{U}$  mit  $^{22}_{10}\text{Ne}$  und  $^{16}_8\text{O}$  sowie von  $^{234}_{94}\text{Pu}$  mit  $^{11}_5\text{B}$  wurden zwei weitere, aus metastabilen Zuständen spaltende Kerne mit Halbwertszeiten von 0,9 msec bzw. 3,5 sec nachgewiesen [55–57]; allerdings war eine Identifizierung noch nicht möglich.  $^{242}_{95}\text{Am}$  sowie die beiden noch nicht identifizierten spontanspaltenden, metastabilen Kernzustände wurden durch Registrieren der Spaltakte mit Kernphotoplatten [58] oder Lithiumphosphat-Glasdetektoren nachgewiesen.

## VI. Zur Entdeckung der Elemente mit $Z = 102$ bis 104

Die Elemente der Ordnungszahlen 102, 103 und 104 wurden erstmals durch Kernreaktionen mit schweren Ionen erhalten. Eine Identifizierung gelang bisher nur auf physikalischem Weg; eine chemische Abtrennung oder Anreicherung dürfte auch in Zukunft nur dann möglich sein, wenn neuartige, sehr schnelle Trennmethoden gefunden werden.

### 1. Entdeckung des Elements 102

Über erste Erfolge zur Darstellung eines Isotops des Elements 102 berichtete 1957 eine englisch-amerikanisch-schwedische Forschergruppe in Stockholm [59]. Durch Beschuß eines Curium-Präparats mit  $^{13}_6\text{C}$ -Ionen wurde über die Rückstoß-

[55] A. F. Linev, B. N. Markov, A. A. Pleve u. S. M. Polikanov, Joint Institute of Nuclear Research (Dubna, UdSSR), Preprint D-1693 (1964).

[56] V. A. Druin, N. K. Skobelev, B. V. Fefilov, V. I. Kusnezov, Y. V. Lobanov u. Y. T. Oganesyan, Joint Institute of Nuclear Research (Dubna, UdSSR), Preprint R-1651 (1964).

[57] J. V. Lobanov, V. I. Kusnetzov, Y. T. Oganesyan, V. P. Pereygin, S. M. Polikanov u. G. N. Flerov, Joint Institute of Nuclear Research (Dubna, UdSSR), Preprint R-1801 (1964).

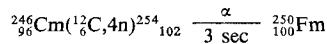
[58] V. P. Pereygin, S. M. Almazova, B. A. Gvozdov u. Y. T. Chuburkov, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 15, 1022 (1962).

[59] L. W. Holm u. B. Aström, Physic. Rev. 107, 1460 (1957).

methode ein  $\alpha$ -aktives Nuklid mit  $E_\alpha = 8,5 \text{ MeV}$  und  $\tau = 10 \text{ min}$  abgetrennt. Die Autoren nahmen die Bildung eines Isotops der Kernladungszahl 102 und der Massenzahl 251, 253 oder 255 [60] an. Da keine Spontanspaltung zu beobachten war, konnte die Bildung eines g,g-Kerns [\*] ausgeschlossen werden (siehe Abschn. D). Die Autoren fühlten sich in der Elementzuordnung dadurch gestärkt, daß bei Ionenaustauschversuchen die  $\alpha$ -Aktivität an der für das Element 102 zu erwartenden Stelle auftrat. Allerdings ergaben nur 12 der insgesamt 50 Bestrahlungsversuche diese  $\alpha$ -Aktivität von 8,5 MeV und weiterhin konnte sie nur bei drei der insgesamt sechs Targets und auch nur bei den jeweils ersten Versuchen mit einem Target erhalten werden.

Bei Wiederholung der Stockholmer Versuche in den USA [61, 62] und in Rußland [46–48] konnten diese Ergebnisse nicht bestätigt werden [\*\*], obwohl sehr ähnliche Versuchsbedingungen und ein etwa zehnfach stärkerer Ionenstrom mit bedeutend geringerer Energiespreizung benutzt wurde. Aufgrund der  $\alpha$ -Zerfallssystematik [11a, 11b] sollte man für ein Isotop des Elements 102 mit 10 min Halbwertszeit auch nur eine  $\alpha$ -Energie von 8,0 MeV erwarten.

Von der amerikanischen Forschergruppe unter Ghiorso [40, 49] konnte das Isotop  $^{254}\text{Fm}$  durch Beschuß von  $^{246}\text{Cm}$  (4,5 Atom-% des Curium-Präparats) mit  $^{12}\text{C}$ -Ionen erhalten werden:



Das Tochterprodukt  $^{250}\text{Fm}$ , das zur Identifizierung von  $^{254}\text{Fm}$  dient, wurde nach der  $\alpha$ -Rückstoßmethode abgetrennt.  $^{250}\text{Fm}$  ist auf Grund seiner langen Halbwertszeit von 30 min und der emittierten  $\alpha$ -Strahlung von 7,40 MeV leicht nachzuweisen.

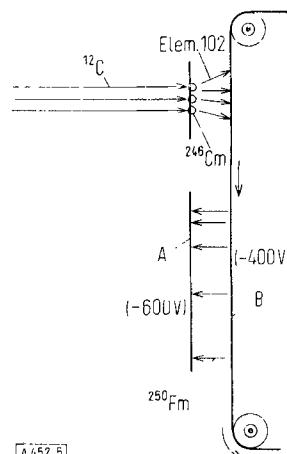


Abb. 5. Zur Erläuterung der Rückstoßmethode (vgl. auch folgenden Text). A = Auffängerfolie; B = Metallband.

Das zur Synthese des Elements 102 von Ghiorso [61] verwendete Target bestand aus einer dünnen Nickelfolie, auf deren Rückseite das Curium niedergeschlagen wurde. Beschießt man

[60] P. R. Fields, A. M. Friedman, J. Milsted, H. Atterling, W. Forsling, L. W. Holm u. B. Åström, Ark. Fysik 15, 225 (1959).

[\*] Ein g,g-Kern ist ein Atomkern mit gerader Protonen- und gerader Neutronenzahl.

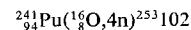
[61] A. Ghiorso, T. Sikkeland, J. R. Walton u. G. T. Seaborg, Physic. Rev. Letters 1, 17 (1958).

[62] A. Ghiorso, University of California (Berkeley), Radiation Laboratory, Report UCRL-8714 (1959).

[\*\*] Daher ist der vorgeschlagene Name „Nobelium“ von der „Commission of Atomic Weights“ der IUPAC noch nicht bestätigt worden.

das Target mit einem  $^{12}\text{C}$ -Ionenstrahl, so werden die entstandenen Atome des Elements 102 herausgeschlagen. Da diese im Augenblick der Bildung stark positiv geladen sind – die Elektronenschalen sind noch nicht vollständig aufgefüllt –, werden sie von einem negativ geladenen bewegten Metallband B angezogen, das sich hinter dem Target befindet. Wenn man die Bandgeschwindigkeit entsprechend wählt, kommen die Atome des Elements 102 in dem Augenblick unter die Auffängerfolie, in dem sie zerfallen. Etwa die Hälfte der dabei durch  $\alpha$ -Zerfall gebildeten, im Augenblick der Entstehung positiv geladenen  $^{250}\text{Fm}$ -Atome werden vom Band abgestoßen und auf der negativeren Auffängerfolie A niedergeschlagen. Es liegt hier also eine doppelte „Rückstoß-Trennung“ vor, die dementsprechend relativ reines  $^{250}\text{Fm}$  liefert. Durch Vergleich von Bandgeschwindigkeit und  $^{250}\text{Fm}$ -Aktivität der Auffängerfolie läßt sich die Halbwertszeit des  $^{254}\text{Fm}$  errechnen.

Die russische Arbeitsgruppe unter Flerov [46–48] erhielt durch Beschuß von  $^{241}\text{Pu}$  mit  $^{16}_8\text{O}$ -Ionen das  $\alpha$ -aktive Isotop  $^{253}\text{Fm}$  über die Reaktion



mit einer Halbwertszeit, die zwischen 2 und 40 sec liegt, und einer  $\alpha$ -Zerfallsenergie von 8,9 MeV. Das gebildete  $^{253}\text{Fm}$  wurde vom Target durch seinen bei der Bildung erhaltenen Kernrückstoß abgetrennt. Die Identifizierung erfolgte auf Grund der  $\alpha$ -Zerfallssystematik durch Energiebestimmung seiner  $\alpha$ -Teilchen in Kernphotoplatten. Amerikanische Arbeiten [63] bestätigten die russischen Ergebnisse ( $E_\alpha = 8,8 \pm 0,1 \text{ MeV}$ ; Halbwertszeit zwischen 10 und 20 sec).

## 2. Entdeckung des Elements 103 (Lawrencium)

Ghiorso und Mitarbeiter [50] fanden im Frühjahr 1961 beim Beschuß von 3  $\mu\text{g}$  Californium mit beschleunigten  $^{10,11}\text{B}$ -Ionen eine  $\alpha$ -Aktivität mit  $E_\alpha = 8,6 \text{ MeV}$  und  $\tau = 8 \pm 2 \text{ sec}$ . Sie ordneten diese Aktivität dem Isotop mit der Massenzahl 257 des Elements 103 zu. Durch Variation der Geschoßteilchen ( $^{12}\text{C}$  statt  $^{10,11}\text{B}$ ) und des Targetkerns ( $^{243}\text{Am}$  statt  $^{249-252}\text{Cf}$ ) konnte ausgeschlossen werden, daß es sich bei der gefundenen  $\alpha$ -Aktivität um Isotope der Elemente 101 und 102 handelt.

## 3. Entdeckung des Elements 104

Um die Mitte des Jahres 1964 entdeckte eine russische Forschergruppe unter Flerov bei einer  $^{242}\text{Pu}(\text{Ne}^{22}, 4n)$ -Reaktion das durch Spontanspaltung mit einer Halbwertszeit von  $0,3 \pm 0,1 \text{ sec}$  zerfallende Isotop  $^{260}\text{Fm}$  [44, 45]. Abbildung 6 zeigt die Wirkungsquerschnitte der beim Beschuß von  $^{242}\text{Pu}$  mit energiereichen  $^{22}\text{Ne}$ -Ionen gebildeten, durch Spontanspaltung zerfallenden Kerne. Das durch Spontanspaltung zerfallende  $^{260}\text{Fm}$  wurde nach Abtrennung mit Hilfe der Rückstoßmethode durch Glasdioden nachgewiesen.

Das Element 104 ist das erste Transactiniden-Element. Es ist als Homologes des Hafniums (Eka-Hf) anzusehen; dies kann die chemische Trennung von den vorausgehenden Elementen der Actinidenreihe sehr erleichtern.

[63] A. Ghiorso, referiert in [40].

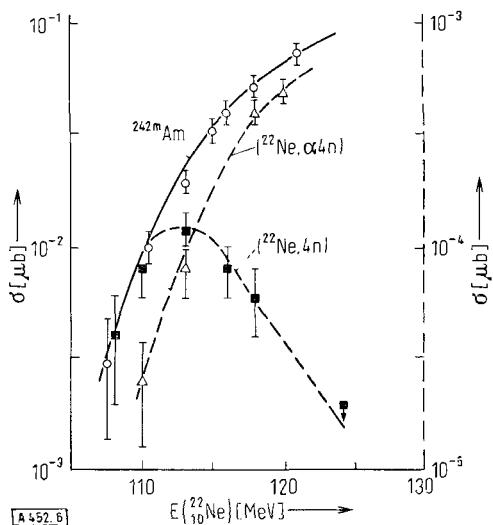


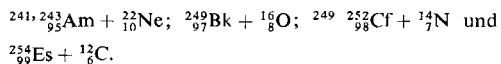
Abb. 6. Wirkungsquerschnitte für die Bildung spontanspaltender Kerne beim Beschuß von  $^{242}_{94}\text{Pu}$  mit  $^{22}_{10}\text{Ne}$ -Ionen. ( $^{242m}_{95}\text{Am}$  linke Ordinate;  $(^{22}_{10}\text{Ne}, \alpha 4\text{n})$  und  $(^{22}_{10}\text{Ne}, 4\text{n})$  rechte Ordinate).

## VII. Darstellungsmöglichkeiten der Elemente mit $Z > 104$ sowie neutronenreicher Kerne der Transcurium-Elemente

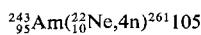
### 1. Kernreaktionen mit schweren Ionen

Die besten Aussichten zur Darstellung weiterer Elemente bieten Kernreaktionen mit schweren Ionen. Als Targetkerne können die in wägbaren Mengen erhältlichen Transurane bis einschließlich Einsteinium verwendet werden. Die Herstellung der Targets dürfte wegen der hohen spezifischen Aktivität der Targetkerne (z. B.  $^{254}_{99}\text{Es}$ : 1,06 Ci/mg) und der erforderlichen hohen Reinheit (<0,1 ppm an anderen schweren Elementen) jedoch sehr schwierig sein.

Zur Darstellung des Elements 105 (Eka-Tantal) sind folgende Kernreaktionen geeignet:



Von diesen Reaktionen wird die letzte den größten Wirkungsquerschnitt besitzen. Da jedoch in den nächsten Jahren noch keine genügend großen Mengen der Transcurium-Elemente zur Verfügung stehen werden, dürfte das Element 105 am ehesten durch die Reaktion  $^{241,243}_{95}\text{Am} + ^{22}_{10}\text{Ne}$  zu erhalten sein. Allerdings wird der äußerst geringe Wirkungsquerschnitt der Am( $\text{Ne}, \text{xn}$ )-Reaktion (etwa  $10^{-2} \mu\text{b}$ ) eine Identifizierung vereinzelter gebildeter Kerne des Elements 105 sehr erschweren. Nach den Fortschritten der Nachweistechnik in den letzten Jahren scheint es durchaus möglich, Produkte von Kernreaktionen nachzuweisen, die ständig nur 0,3 Spontanspaltungen oder 50  $\alpha$ -Zerfälle erleiden [18]. Nimmt man für die Bildung des Elements 105 die Reaktion



an, so entsteht ein Isotop mit einem großen Neutronenunterschluß, welches eine bedeutend kürzere Halbwerts-

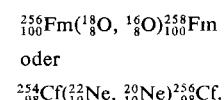
zeit besitzen dürfte als das vermutlich stabilste Isotop mit der Massenzahl 265. Dieses ist jedoch über keine der im vorhergehenden Abschnitt aufgeführten Kernreaktionen zu erhalten, da Kernreaktionen mit schweren Ionen nur zu Isotopen mit Neutronenunterschluß und dementsprechend nicht zu den stabilsten Isotopen führen. Um das Neutronendefizit der Endprodukte dieser Kernreaktionen etwas zu verringern, werden häufig neutronenreiche Geschosse wie  $^{22}_{10}\text{Ne}$ ,  $^{18}_{6}\text{O}$ ,  $^{13}_{6}\text{C}$ , aber nicht  $^{20}_{10}\text{Ne}$ ,  $^{16}_{6}\text{O}$  oder  $^{12}_{6}\text{C}$  verwendet. Allerdings besitzen dann vielfach die ( $X, 4n$ )-, ( $X, 5n$ )- und ( $X, 6n$ )-Reaktionen vergleichbare Wirkungsquerschnitte. Wegen des Neutronenmangels der Endkerne werden auch zumeist neutronenreiche Target-Isotope eingesetzt (z. B.  $^{242}_{94}\text{Pu}$  statt  $^{239}_{94}\text{Pu}$ ).

Durch analoge Kernreaktionen scheint es möglich, in nicht zu ferner Zukunft Isotope der Elemente bis  $Z = 109$  (Eka-Iridium) darzustellen. ( $X, xn$ )-Bildungsreaktionen für diese Elemente sind im folgenden, nach abnehmenden Wirkungsquerschnitten geordnet, aufgeführt:

$$\begin{aligned} Z = 106: & (^{254}_{99}\text{Es} + ^{14}_{7}\text{N}) > (^{252}_{98}\text{Cf} + ^{16}_{8}\text{O}) > (^{244-248}_{96}\text{Cm} + ^{22}_{10}\text{Ne}) \\ Z = 107: & (^{254}_{99}\text{Es} + ^{16}_{8}\text{O}) > (^{249}_{97}\text{Bk} + ^{22}_{10}\text{Ne}) \\ Z = 108: & (^{252}_{98}\text{Cf} + ^{22}_{10}\text{Ne}) \\ Z = 109: & (^{254}_{99}\text{Es} + ^{22}_{10}\text{Ne}) \end{aligned}$$

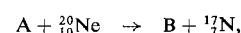
Falls man zumindest  $\mu\text{g}$ -Mengen  $^{257}_{100}\text{Fm}$  gewinnen könnte – was heute noch nicht möglich ist – wäre auch die Darstellung des Elements 110 durch die Reaktion  $^{257}_{100}\text{Fm} + ^{22}_{10}\text{Ne}$  denkbar.

Zur Synthese neutronenreicher, noch unbekannter Isotope der Elemente Fermium oder Californium kann eine Art Stripping-Reaktion (vgl. Abschn. C.II) mit schweren Ionen benutzt werden:



Die Herstellung dieser Kerne ist prinzipiell auch durch die ( $^3\text{H}, \text{p}$ )-Reaktion denkbar.

Die Synthese von  $^{258}_{100}\text{Fm}$  und  $^{256}_{98}\text{Cf}$  über multiplen Neutroneneinfang in Kernreaktoren ist infolge zu geringer Neutronenflüsse nicht möglich. Eine Darstellung wäre jedoch sehr erwünscht, da die Kenntnis der Halbwertszeiten der Spontanspaltung dieser Kerne für die Systematik der Spontanspaltung von großer Bedeutung ist und da die von verschiedenen Autoren berechneten Halbwertszeiten für die Spontanspaltung große Unterschiede aufweisen [63a]. Die Aussichten, derartige Prozesse durchzuführen, sind nicht gering, da die Wirkungsquerschnitte ähnlicher Reaktionen

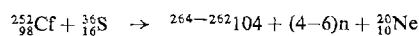


bei der drei Protonen eingefangen werden, mit steigender Kernladungszahl des Targetkerns zunehmen [9] [z. B. bei einer effektiven Projektilenergie von 100 MeV:  $\sigma(^{27}_{13}\text{Al}) = 0,1 \text{ mb}$ ;  $\sigma(^{181}_{73}\text{Ta}) = 1 \text{ mb}$ ].

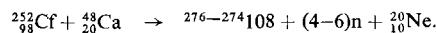
[63a] N. Feather, Proc. Roy. Soc. Edinburgh. Sect. A 66, 20 (1961/62).

## 2. Kernreaktionen mit superschweren Ionen

Neben den Aufbaureaktionen mit C, N, O oder Ne als Geschoßteilchen (Kernreaktionen mit  $^{19}\text{F}$  sind bisher noch nicht untersucht) ist die Verwendung noch schwererer – sogenannter superschwerer – Ionen, z. B.  $^{24}\text{Mg}$  oder  $^{48}\text{Ca}$ , zu diskutieren. Da für diese Ionen zur Überwindung des Coulombwalls sehr hohe Energien notwendig sind und der Zwischenkern dementsprechend sehr hoch angeregt wird, kommt es fast ausschließlich zur Spaltung des Zwischenkerns ( $\sigma_f/\sigma_{\text{xn}} > 10^{10}$ ). Es besteht jedoch die begründete Hoffnung, daß die Wirkungsquerschnitte für Reaktionen, bei denen der Targetkern nur einen Teil des Geschosses einfängt, mindestens  $10^{-4} \mu\text{b}$  sind, so daß sich vereinzelt so entstandene Kerne auch werden nachweisen lassen. Durch den Einfang nur eines Teils des superschweren Projektils erhält der Zwischenkern eine geringere Anregungsenergie als beim Einfang des ganzen Ions. Mögliche Reaktionen dieser Art sind z. B.:



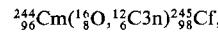
und



Rein formal handelt es sich bei diesen beiden Reaktionen um den Beschuß von  $^{252}\text{Cf}$  mit den neutronenreichen  $^{16}_6\text{C}$ - bzw.  $^{28}_{10}\text{Ne}$ -Ionen. Der Vorteil derartiger Kernreaktionen liegt darin, daß hierbei die wahrscheinlich längstlebigen Isotope der einzelnen Elemente erhalten werden können. Die Hoffnung, daß solche Reaktionen einen Wirkungsquerschnitt von mindestens  $10^{-11}\text{b}$  aufweisen, basiert darauf, daß nicht über Compoundkern-Bildung verlaufende Reaktionen wie

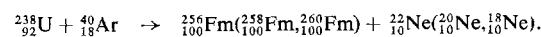


oder



einen zumindest nicht viel kleineren Wirkungsquerschnitt besitzen als die über Compoundkerne ablaufenden Reaktionen ( $^{13}_6\text{C},\text{xn}$ ) bzw. ( $^{16}_8\text{O},\text{xn}$ ) [37].

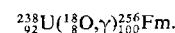
Neben diesen „partiellen“ Kernverschmelzungsreaktionen mit folgender Neutronenverdampfung sind noch Reaktionen möglich, bei denen durch eine Art Wechselwirkung am Kernrand ein größerer Teil des Projektils eingefangen wird, ohne daß der Kern hoch angeregt wird. Derartige Reaktionen wären z. B.:



Es gibt Hinweise, daß solche Kernreaktionen möglich sind und meßbare Wirkungsquerschnitte aufweisen [64].

## 3. Einfang schwerer Geschoßteilchen ohne Nukleonerverdampfung

Eine weitere Möglichkeit, Isotope der schwersten Elemente herzustellen, beruht darauf, daß der Zwischenkern seine ganze Anregungsenergie durch Emission von  $\gamma$ -Quanten abgeben kann (radiative capture) [64], z. B. in der Reaktion

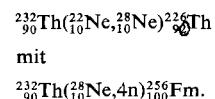


[64] G. N. Flerov, E. D. Donets u. V. A. Druin, Atomenergie (russ.) 14, 18 (1963).

Für diesen Prozeß wurden bei leichten Targetkernen und schweren Projektile (z. B. beim Beschuß von  $^{27}_{13}\text{Al}$  oder  $^{31}_{15}\text{P}$  mit  $^{16}_8\text{O}$ -Ionen) Wirkungsquerschnitte von etwa  $1 \mu\text{b}$  beobachtet [65, 66]. Nimmt man an, daß derartige Wirkungsquerschnitte bei schweren Targetkernen um nicht mehr als fünf Größenordnungen geringer sind, so bedeutet dies, daß mit einem Strom von  $100 \mu\text{A}$  schwerer Ionen zehn Einfangreaktionen pro Stunde stattfinden. Falls hierbei spontanspaltende Nuklide gebildet würden, wäre ihr Nachweis auch in so geringer Zahl möglich.

## 4. Sekundärreaktionen der emittierten Partikel

Die Aussichten, bei Kernreaktionen emittierte Partikel als Geschosse für weitere Kernreaktionen zu verwenden, werden ebenfalls diskutiert [64]. Beschießt man z. B.  $^{232}_{90}\text{Th}$  mit  $^{22}_{10}\text{Ne}$ -Ionen, so beobachtet man die Bildung von Radium-, Actinium- und Thorium-Isotopen mit Massenzahlen von 224 bis 227. Es handelt sich hierbei um eine dem „Pick-up“-Prozeß (vgl. Abschn. C.II) ähnliche Reaktion, bei dem ein Teil der vom Targetkern abgegebenen Nukleonen auf das Geschoß übertragen wird. So erhält man bei der Bestrahlung von Thorium mit Neon-Ionen einen sekundären Strom schwerer Ionen des Neons, Natriums und Magnesiums. Bei einem Wirkungsquerschnitt der „Pick-up“-Reaktion von  $1 \text{ mb}$  erhält man mit einem Neon-Ionen-Strom von  $100 \mu\text{A}$  und einem  $^{232}_{90}\text{Th}$ -Target ( $10 \text{ mg/cm}^2$ ) ca.  $10^6$  Sekundärteilchen/sec. Reaktionen mit diesen Sekundärteilchen sind noch nachweisbar (einige Zerfälle pro Stunde), wenn der Wirkungsquerschnitt der Zweitreaktion mindestens  $0,1 \text{ mb}$  beträgt. Bei dieser Reaktion dient Thorium sowohl als Ionenstrahl-Umformer als auch als Target für die sekundäre Reaktion, gemäß



Die Hoffnung, daß diese Methode ein gangbarer Weg zur Synthese neutronenreicher Isotope der schwersten Elemente sei, gründet sich darauf, daß beim Beschuß von Blei ( $Z = 82$ ) mit Protonen, Deuteronen und  $\alpha$ -Teilchen Isotope des Astats ( $Z = 85$ ) mit einem Wirkungsquerschnitt von 0,2 bis  $0,3 \mu\text{b}$  nachgewiesen wurden [67]. Es handelt sich hierbei auch um einen Zweistufenprozeß. In der ersten Stufe erzeugen die leichten Projekteile durch einen Direktprozeß einen sekundären Teilchenstrom von Lithium-Ionen; dieser führt seinerseits über eine Compoundkern-Reaktion mit Blei (Target) zu Isotopen des Astats.

## D. Die Stabilität der schweren Kerne

Bei den schwersten Kernen sind der  $\alpha$ -Zerfall und die Spontanspaltung die vorherrschenden Zerfallsarten. Wie aus Abbildung 7 hervorgeht, beträgt die Halbwertszeit des  $\alpha$ -Zerfalls der längstlebigen Isotope der Elemente

[65] R. Coleman, D. Herbert u. J. Perkin, Proc. physic. Soc. (London) 77, 526 (1959).

[66] D. Fischer u. A. Zucker, Physic. Rev. 113, 542 (1959).

[67] Wang Yung-Yü, V. Kusnetzov, M. J. Kusnetsova, V. N. Mekhedov u. V. Khalkin, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 12, 370 (1961).

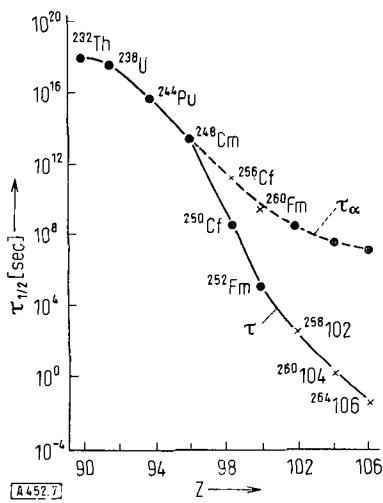


Abb. 7. Halbwertszeiten für die längstlebigen g,g-Kerne der schweren Elemente (x: auf Grund von Spontanspalt- oder  $\alpha$ -Zerfallssystematik berechnet; ●: experimentell bestimmt). Halbwertszeit  $\tau_{1/2}$  (—); partielle Halbwertszeit für den  $\alpha$ -Zerfall  $\tau_\alpha$  (---).

bis  $Z \approx 106$  etwa ein Jahr, während die Halbwertszeit des Nuklidzerfalls [\*] bedeutend kürzer ist.

Aus dem Tröpfchenmodell des Atomkerns läßt sich ableiten, daß die Halbwertszeit  $\tau_{sp}$  der Spontanspaltung der schwersten Nuklide mit steigendem  $Z^2/A$  abnimmt [68–70]. Daß diese Beziehung den Zusammenhang jedoch nur sehr grob wiedergibt, zeigt Abbildung 8. Aus dieser Darstellung sind drei generelle Abweichungen zu erkennen:

1. Die Halbwertszeiten der Spontanspaltung nehmen selbst für die längstlebigen g,g-Isotope der schweren Elemente nicht linear mit  $Z^2/A$  ab. Oberhalb  $Z^2/A = 37$  treten deutliche Abweichungen auf. Die gefundenen  $\tau_{sp}$ -Werte sind stets größer als die berechneten.
2. Die Halbwertszeiten der Spontanspaltung der Isotope eines Elements liegen auf einer parabolischen Kurve, wie zuerst von *Huizenga* [71] gefunden wurde.
3. Die Halbwertszeiten der Spontanspaltung der nicht-g,g-Kerne sind bei etwa gleichem  $Z^2/A$  um den Faktor  $10^3$  bis  $10^6$  größer als die der g,g-Kerne.

Diese Abweichungen können mit dem Tröpfchenmodell nicht erklärt werden. Versuche, die Berechnung von

[\*] Die partielle Halbwertszeit  $\tau_x(x = \alpha, \beta^-, \beta^+, sp\dots)$  von Radioaktivitäten mit Verzweigungszerfällen ist ein Maß für die jeweilige Zerfallswahrscheinlichkeit. Obwohl sie praktisch nur eine Rechengröße ist, ist sie jedoch für die Systematik der einzelnen Zerfallsarten von Bedeutung. Meßbar allein ist die Halbwertszeit des Nuklidzerfalls  $\tau$ , die kurz Halbwertszeit genannt wird und auch stets angegeben wird. Sie ist mit den partiellen Halbwertszeiten der einzelnen Zerfallsarten eines Nuklids so verknüpft, daß die Summe der reziproken partiellen Halbwertszeiten gleich der reziproken Halbwertszeit  $\tau$  ist:

$$1/\tau = \Sigma 1/\tau_x$$

Die Halbwertszeit  $\tau$  ist stets kleiner als jede der partiellen Halbwertszeiten  $\tau_x$ , im Grenzfall ist sie diesen höchstens gleich.

Beispiel:  $^{252}\text{Cf}$  zeigt dualen Zerfall:  $\alpha$ -Emission mit  $\tau_\alpha = 2,66$  a und Spontanspaltung mit  $\tau_{sp} = 66$  a, was einer Zerfallswahrscheinlichkeit von 4,1% durch Spontanspaltung und 95,9% durch  $\alpha$ -Emission entspricht. Die Halbwertszeit  $\tau$  des  $^{252}\text{Cf}$ -Zerfalls beträgt 2,55 a.

[68] N. Bohr u. J. Wheeler, Physic. Rev. 56, 426 (1939).

[69] G. T. Seaborg, Physic. Rev. 85, 157 (1952).

[70] W. Whitehouse u. W. Galbraith, Nature (London) 169, 494 (1952).

[71] J. R. Huizenga, Physic. Rev. 94, 158 (1954).

Halbwertszeiten der Spontanspaltung durch Korrekturterme zu verbessern [72–75], brachten für die meisten Kerne noch kein befriedigendes Ergebnis. Zur Voraussage von Halbwertszeiten der Spontanspaltung unbekannter Kerne ist man immer noch auf Extrapolationen experimenteller Werte angewiesen.

In Tabelle 3 sind für einige Kerne mit  $102 \leq Z \leq 104$  die durch Extrapolation erhaltenen Zerfallsdaten angegeben [76]. Generell ergibt sich, daß für Isotope der Elemente mit  $Z > 100$  bei Neutronendefizit der  $\alpha$ -Zerfall, bei Neutronenüberschuß die Spontanspaltung die Lebensdauer eines Kerns bestimmen. Die Halbwertszeiten sind allgemein sehr kurz und dürften für die Elemente

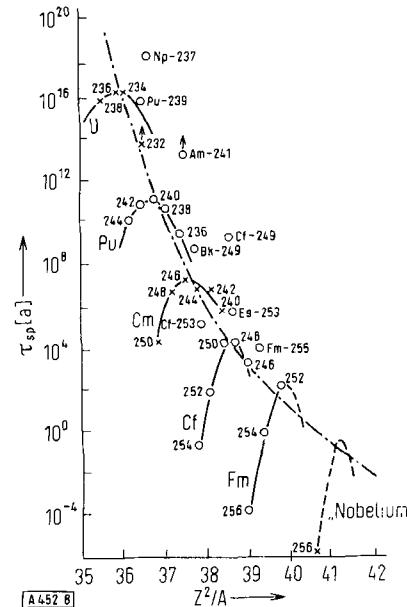


Tabelle 3. Zerfallsdaten für einige Isotope der Elemente mit der Ordnungszahl 102 bis 104.  $\tau_\alpha$ ,  $\tau_{\text{sp}}$  und  $\tau_e$  sind die partiellen Halbwertszeiten für den  $\alpha$ -Zerfall bzw. die Spontanspaltung bzw. den Elektroneneinfang;  $\tau$  ist die allein zu messende Halbwertszeit.  $E_\alpha$  ist die Energie der emittierten  $\alpha$ -Strahlung. (Die für die Lebensdauer eines Kerns entscheidende partielle Halbwertszeit ist unterstrichen).

Kern	abgeschätzt				gefunden	
	$\tau_\alpha$ [sec]	$E_\alpha$ [MeV]	$\tau_{\text{sp}}$	$\tau_e$	$\tau$ [sec]	$\tau$ [sec] ( $E$ [MeV])
$^{252}_{102}$	<u>1</u>	8,76	10 d	20 min	1	
$^{253}_{102}$	<u>5</u>	8,56	20 d	10 min	5	$\tau_\alpha = 2-40$ ( $E_\alpha = 8,3$ )
$^{254}_{102}$	<u>20</u>	8,36	50 d	2 h	20	$\tau_\alpha = 3$ ( $E_\alpha = 8,3$ )
$^{255}_{102}$	<u>20</u>	8,36	2 d	50 min	20	
$^{256}_{102}$	<u>20</u>	8,36	5 h	2 d	20	$\tau_\alpha = 8$ ; $\tau_{\text{sp}} = 1500$
$^{257}_{102}$	<u>60</u>	8,20	<u>1</u> min	5 h	30	
$^{258}_{102}$	300	8,04	<u>20</u> sec	stabil	20	
$^{255}_{\text{Lw}}$	<u>1</u>	8,90	2 d	10 min	1	
$^{256}_{\text{Lw}}$	<u>2</u>	8,86	5 h	5 min	2	
$^{257}_{\text{Lw}}$	<u>2</u>	8,82	1 min	20 min	2	$\tau_\alpha = 8$ ( $E_\alpha = 8,6$ )
$^{258}_{\text{Lw}}$	<u>5</u>	8,66	20 sec	20 sec	4	
$^{259}_{\text{Lw}}$	20	8,50	2 sec	2 h	18	
$^{260}_{\text{Lw}}$	60	8,34	0,1 sec	20 min	0,09	
$^{256}_{104}$	00,5	9,48	5 h	20 min	3	
$^{257}_{104}$	0,1	9,40	1 min	10 min	6	
$^{258}_{104}$	0,2	9,32	20 sec	50 min	0,2	
$^{259}_{104}$	0,5	9,17	2 sec	20 min	0,4	
$^{260}_{104}$	1	9,00	0,1 sec	5 h	0,09	$\tau_{\text{sp}} = 0,3$
$^{261}_{104}$	5	8,84	<u>0,005</u> sec	1 h	0,005	

ein Isotop mit einer Halbwertszeit von etwa tausend Jahren aufweisen. Die Transcalifornium-Elemente zeigen nun wieder dieselbe plötzliche Stabilitätsabnahme wie die Transwismut-Elemente. Wenn man annimmt, daß sich eine solche Instabilitäts-Stabilitätsfolge nochmals wiederholt, so sollte man für die Elemente mit  $Z \approx 109$  bis 112 wieder größere Halbwertszeiten erwarten, besonders da Kerne in der Nähe der nächsten magischen Neutronenzahl (184 Neutronen) erreicht werden könnten. — Allerdings ist in diesen Betrachtungen die Spontanspaltung der Kerne nicht einbezogen.

Die Möglichkeit, neue Elemente aufzubauen, ist tatsächlich dann zu Ende, wenn die Zerfallsgeschwindigkeit des Kerns größer als die Bildungsgeschwindigkeit wird. Für das erste „Element“, für das diese Bedingung zutreffen wird, wurde der Name „Cosmium“ vorgeschlagen [77].

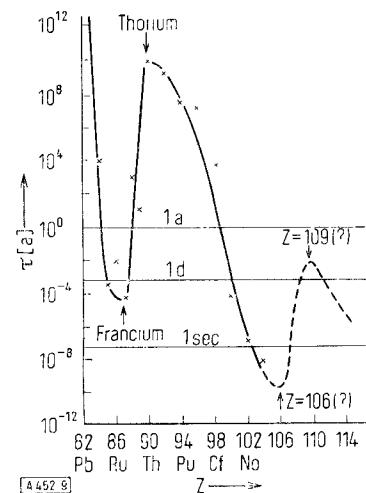


Abb. 9. Stabilität der längstlebigen Isotope der Transwismut-Elemente ohne Berücksichtigung der Zerfallsart.

[77] M. Haissinsky in P. Pascal: Nouveau traité de chimie minérale. Masson et Cie., Paris 1962. Bd. XV, 3, S. 1004.

## E. Zur Existenz superschwerer Kerne

Unter Verwendung der bis 1957 bekannten Daten über die Stabilität der schwersten Elemente sowie der sich aus der halbempirischen Massenformel von Green ergebenden Bindungsenergien der einzelnen Nukleonen in den schwersten Elementen sagten Werner und Wheeler [78, 79] die Existenzmöglichkeit von Atomkernen bis zur Kernladungszahl  $Z = 147$  und zur Massenzahl  $A = 500$  voraus, welche eine Halbwertszeit von mindestens  $10^{-4}$  sec besitzen sollten. Alle Annahmen über die Stabilität dieser superschweren Kerne wurden hierbei durch Extrapolationen der Eigenschaften bekannter Kerne über einen sehr großen Bereich erhalten. Derartige Extrapolationen sind jedoch außerordentlich unsicher. Aus den Berechnungen geht hervor, daß auch bei Kernladungszahlen oberhalb  $Z = 137$  der Einfang von Elektronen aus den Atomschalen nicht die Lebensdauer der schweren Kerne bestimmen wird. — Man kann annehmen, daß Kerne mit  $Z > 137$  nur in Sternen mit Neutronenflüssen über  $10^{30}$  Neutronen/cm<sup>2</sup>·sec vorhanden sind.

## F. Neutronen-Kerne

Von einigen Autoren [80–83] wird die Existenz sogenannter Neutronen-Kerne erörtert. Es handelt sich dabei um Kerne, die praktisch nur aus Neutronen bestehen und eine geringere Dichte aufweisen sollen als die normalen Atomkerne. Auf Grund der Oberflächenspannung kann dieser „Neutronentropfen“ erst ab einer Mindestgröße auftreten. Falls diese Annahmen zutreffen, ist es wahrscheinlich, daß ein ganzes Gebiet superschwerer Neutronenkerne existiert, entweder in Berührung mit dem Gebiet der bekannten Kerne (Abb. 10b) oder in einer Insel (Abb. 10a).

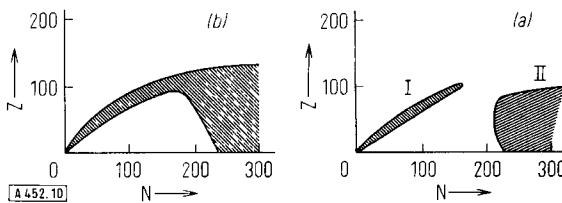


Abb. 10. Zur Lage der „Neutronenkerne“ im Nuklid-Feld. I: bekannte Atomkerne; II: Neutronenkerne.

## G. Ausblick

Wenn die Experimentier- und Nachweistechnik weiter verbessert wird, ist es durchaus möglich, daß in den nächsten Jahren Isotope der Elemente bis zur Ordnungszahl 109 (Eka-Iridium) nachgewiesen werden können.

[78] F. G. Werner u. J. A. Wheeler, Physic. Rev. 109, 126 (1958).

[79] J. A. Wheeler in: Niels Bohr and the Development of Physics. Pergamon Press, London 1955, Kap. 9.

[80] A. I. Baz, V. I. Goldanskii u. Y. B. Zeldovich, Sov. Phys. Uspekhi [engl. Übersetzung aus Fortschr. Chem. (russ.)] 3, 729 (1961).

[81] Y. B. Zeldovich, Sov. Phys. JETP [engl. Übersetzung von J. exp. theoret. Physik (russ.)] 11, 812 (1960).

[82] E. E. Salpeter, Bull. Amer. phys. Soc. 4, 256 (1959).

[83] K. A. Brueckner, J. L. Gammel u. J. T. Kubis, Physic. Rev. 118, 1095 (1960).

nen. Die Bildungsreaktionen dieser Kerne haben sehr kleine Wirkungsquerschnitte, so daß nur wenige Atome dieser Elemente entstehen werden, welche sich wahrscheinlich nur physikalisch identifizieren lassen werden (Registrierung der Zerfallsprodukte in Kernphotoplatten oder Glasdetektoren). Eine Massenzahlbestimmung ist nach Ghiorso [62] durch Flugzeitmessung oder massenspektrometrische Trennung der primären Rückstoßatome denkbar. Bei der Zuordnung der Massenzahlen für die schwersten Kerne ist man heute noch weitgehend auf Analogieschlüsse angewiesen. Eine chemische Abtrennung der schwersten Elemente wird wegen der kur-

zen Halbwertszeiten äußerst schwierig, vielleicht sogar unmöglich sein.

Die Daten über Herstellungsbedingungen und Stabilität der schwersten Kerne wurden weitgehend durch Extrapolation gewonnen, so daß Folgerungen zumindest zum Teil als hypothetisch anzusehen sind. Trotz allem besteht berechtigte Hoffnung, die Liste der heute bekannten Elemente noch zu erweitern.

*Herrn Prof. Dr. W. Seelmann-Eggebert bin ich für zahlreiche Hinweise und Diskussionsbemerkungen zu Dank verpflichtet.*

Eingegangen am 4. Januar 1965 [A 452]

## Fortschritte in der Theorie der Flüssigkeiten

VON DR. TERESA S. REE [\*], PROF. DR. T. REE UND PROF. DR. H. EYRING

DEPARTMENT OF CHEMISTRY, UNIVERSITY OF UTAH, SALT LAKE CITY, UTAH (USA)

*Es werden Theorien und Modelle besprochen, mit deren Hilfe Flüssigkeitseigenschaften berechnet werden können. Nicht diskutiert werden Methoden, welche Cluster-Integrale oder radiale Verteilungsfunktionen zu Hilfe nehmen. Die der Zelltheorie sowie der Tunneltheorie und der signifikanten Strukturtheorie zugrundeliegenden Prinzipien werden behandelt und die Vorteile jeder der drei Theorien untersucht, indem theoretische und experimentelle Werte des Drucks, des Molvolumens, der Kompressibilität und der Überschuß-Entropien realer Flüssigkeiten verglichen werden. — Die thermodynamischen Eigenschaften einer zweidimensionalen Flüssigkeit aus „harten Scheiben“ und einer dreidimensionalen Flüssigkeit aus „harten Kugeln“ werden ebenfalls berechnet. — Es ergibt sich, daß die signifikante Strukturtheorie in allen Fällen die besten Resultate liefert.*

### Vorbemerkung [\*\*]

Für den Chemiker ist eine vertiefte Kenntnis der Eigenschaften der Aggregatzustände auch nach der theoretischen Seite hin nützlich. Erfahrungsgemäß ist dem Chemiker der rechnerische Umgang mit den dabei verwendeten Molekülmödellen aber nicht so vertraut wie dem Physikochemiker. Darum seien einige Bemerkungen über das Prinzipielle vorangestellt. Gerade wegen der Mittelstellung des flüssigen Aggregatzustands zwischen geordneter Festphase und ungeordneter Gasphase erfordert die rechnerische Behandlung des flüssigen Zustands spezielle vereinfachende Strukturmodelle.

(Bei Gasen ist die Verwendung spezieller Molekülmödelle besser bekannt, z. B. zur Berechnung des zweiten Virialkoeffizienten. — Aber auch die Koeffizienten der Transportphänomene können nur ermittelt werden, wenn spezielle Annahmen über die Molekülmödelle gemacht werden.)

Im wesentlichen unterscheiden sich die Flüssigkeitsmodelle durch ihre Potentialfunktionen, die eine Angabe über die mit dem Abstand variierenden Anziehungs- und Abstoßungskräfte der Moleküle machen. Auf diese Weise werden die sogenannten 6,12-Potentiale oder auch das Kasten-Potential eingeführt. Ein „hartes“ Modell ist dadurch ausgezeichnet, daß das Abstoßungspotential unendlich groß wird, wenn sich ein zweites Molekül einem betrachteten Molekül bis auf den

Abstand des Moleküldurchmessers nähert; für dieses Modell ist das Anziehungspotential Null.

Für Flüssigkeiten werden im folgenden zwei Potentialmodelle diskutiert, das 6,12-Potential nach Lennard-Jones und das Potential einer „harten“ Kugel.

Für jedes der beiden Modelle werden drei Annahmen über die spezielle Struktur der Flüssigkeiten gemacht.

1. Die Zelltheorie, bei der die Nachbar teilchen eines zentralen Moleküls als über eine Kugel von gegebenem Radius gleichmäßig „verschmiert“ angesehen werden.
2. Die Tunneltheorie, die eine Modifizierung der Zelltheorie für eine Dimension darstellt.
3. Die „signifikante“ Strukturtheorie, die der Flüssigkeit festkörperähnliche und gasähnliche Freiheitsgrade ordnet. Hierbei werden allein diejenigen Bereiche des Phasenraums berücksichtigt, die maximale Beiträge zum Zustandsintegral liefern.

Der Versuch, Gase und Flüssigkeiten mit verschiedenen Potentialmodellen zu beschreiben, erweist aber bereits eine Erfahrungstatsache: Die meisten Stoffeigenschaften zeigen sich bei geeigneter Wahl der Parameter als relativ unempfindlich gegenüber dem benutzten Potentialmodell.

In dieser Arbeit über Flüssigkeitstheorien werden die Potentialmodelle mit verschiedenen Annahmen über die Flüssigkeitsstrukturen an Hand der kritischen Konstanten für Neon, Argon, Stickstoff und Methan diskutiert. Außerdem werden die Werte der Schmelz-Energie und Schmelz-Entropie für Argon berechnet.

[\*] Gegenwärtige Adresse: Department of Chemistry, University of California, La Jolla, Calif. (USA).

[\*\*] Verfaßt vom Übersetzer zur Herausstellung der prinzipiellen Methodik des hier behandelten Arbeitsgebietes.