

## 223. Massen- und Ladungsverteilung bei der Spaltung von $^{249}\text{Cf}$ mit thermischen Neutronen

Vorläufige Mitteilung<sup>1)</sup>

von **K. F. Flynn**<sup>2)</sup>

Eidg. Institut für Reaktorforschung, Würenlingen, Schweiz

und **H. R. von Gunten**

Eidg. Institut für Reaktorforschung, Würenlingen und  
Anorgan.-chemisches Institut der Universität Bern, Schweiz

Herrn Prof. Dr. W. FEITKNECHT zum siebenzigsten Geburtstag gewidmet

(12. IX. 69)

*Summary.* The distribution of mass and charge in the thermal-neutron-induced fission of  $^{249}\text{Cf}$  has been investigated by radiochemical determination of the fission yields of 25 mass chains and one shielded nuclide (independent yield). The mass distribution is asymmetric, as in all known cases of low-energy fission. The fission yield data indicate a value of  $6 \pm 1.5$  for  $\bar{\nu}$ , the average number of neutrons emitted per fission. The division of nuclear charge, as indicated by the independent yield of  $^{138}\text{Cs}$ , is consistent with the equal charge displacement hypothesis characteristic of low-energy fission.

**1. Einleitung.** – Bei der niederenergetischen Kernspaltung entstehen vorwiegend zwei Spaltfragmente mit unterschiedlichen Massen. Die Massenverteilungen sind deshalb asymmetrisch und weisen zwei ausgeprägte Maxima auf. Änderungen in der Masse des spaltenden Kernes wirken sich in einer Verschiebung der Lage des leichten Pikes aus, während die Lage des schweren Pikes sehr stabil ist. Erst bei den schwersten der untersuchten Nuklide ( $^{245}\text{Cm}$  [1],  $^{252}\text{Cf}$  [2]) scheint sich mit zunehmender Masse auch der schwere Pik gegen höhere Massenzahlen hin zu verschieben. Diese Verschiebung wirkt sich hauptsächlich auf der schweren Flanke des Pikes aus, während die leichte Flanke ihre wahrscheinlich durch doppelt magische Strukturen der Spaltproduktkerne (50 Protonen, 82 Neutronen) bedingte stabile Lage weitgehend beibehält. Zur Bekräftigung dieser Ergebnisse ist es wünschenswert, Massenverteilungen weiterer schwerer Kerne (z. B.  $^{249}\text{Cf}$ ,  $^{251}\text{Cf}$ ,  $^{254}\text{Es}$ ) zu untersuchen.

Daten über die Ladungsverteilung (Ordnungszahl) der Spaltfragmente sind vor allem an  $^{235}\text{U}$  gesammelt worden. Bei schwereren und leichteren Kernen liegen mit der Ausnahme von  $^{252}\text{Cf}$  (spontane Spaltung) nur wenige Messungen vor; es schien deshalb auch aus diesem Grunde angebracht, schwerere spaltbare Kerne zu untersuchen. Die Ladungsverteilungen in  $\beta$ -Zerfallsreihen (Isobaren) besitzen eine GAUSSsche Form um eine wahrscheinlichste Ladung  $Z_p$ . Bei allen bis jetzt untersuchten Fällen von niederenergetischer Kernspaltung weisen die GAUSS-Verteilungen annähernd gleiche Parameter auf. Eine praktische Grösse, um Ladungsverteilungen zu vergleichen, ist die Abweichung von  $Z_p$  von  $Z_{\text{UCD}}$  bei unveränderter Ladungsverteilung (unchanged charge distribution = UCD), d. h. einer Ladungsverteilung, bei welcher das

<sup>2)</sup> Eine ausführliche Mitteilung soll im J. inorg. nucl. Chemistry erscheinen.

<sup>1)</sup> Gastwissenschaftler vom ARGONNE NATIONAL LABORATORY, Argonne, Illinois, USA.

Verhältnis von Ladung und Masse im Spaltfragment dasselbe ist wie im sich spaltenden Kern.  $Z_{\text{UCD}}$  ist also gleich  $A'(Z_F/A_F)$ , wo  $A'$  die Masse des primär gebildeten Spaltfragmentes vor seiner Neutronenemission bedeutet und  $Z_F/A_F$  gleich ist dem Verhältnis von Ladung und Masse im spaltenden Kern. Bei allen bis jetzt untersuchten Fällen von Ladungsverteilungen [1] [3] [4] [5] [6] beträgt  $Zp-A'(Z_F/A_F)$  oder  $Z-Z_{\text{UCD}}$  ungefähr 0,5 Ladungseinheiten (mit positivem Vorzeichen für die leichten Spaltfragmente und negativem Vorzeichen für die schweren).

**2. Experimenteller Teil.** – Die  $^{249}\text{Cf}$ -Quelle. Eine Quelle von  $^{249}\text{Cf}$  wurde uns in verdankenswerter Weise von der «Heavy Element Group» des ARGONNE NATIONAL LABORATORY (USA) leihweise zur Verfügung gestellt.  $^{249}\text{Cf}$  war durch  $\beta$ -Zerfall aus einem reinen Präparat von  $^{249}\text{Bk}$  hergestellt worden [7] und darf deshalb als isotopisch rein angesehen werden. Eine Isotopenanalyse ist jedoch noch nicht durchgeführt worden. Dank seinem hohen Spaltquerschnitt von 1735 barn [8] konnten die Untersuchungen mit nur ungefähr  $10^{14}$  Atomen  $^{249}\text{Cf}$  durchgeführt werden. Die  $^{249}\text{Cf}$ -Quelle wurde praktisch gewichtslos auf einem Aluminiumträger abgeschieden. Sie wurde als Rückstossquelle verwendet und konnte deshalb unverändert für sämtliche Bestrahlungen eingesetzt werden. Für die Neutronenbestrahlung wurde die Quelle in Folien aus Aluminium, Mylar oder Polyäthylen eingewickelt; die nach der Kernspaltung mit grosser Energie aus der  $^{249}\text{Cf}$ -Quelle austretenden Spaltfragmente wurden von diesen Auffangfolien (5–9 mg/cm<sup>2</sup> Dicke) absorbiert. Die besten Resultate hinsichtlich unerwünschter durch  $n, \gamma$ -Prozesse induzierter Aktivitäten wurden mit den Polyäthylen-Auffangfolien erzielt.

*Bestrahlung und chemische Abtrennungen.* Die in Folien verpackte  $^{249}\text{Cf}$ -Quelle wurde zusammen mit Proben, die 1 bis 10  $\mu\text{g}$  99,5-proz.  $^{235}\text{U}$  enthielten, im Schwimmbadreaktor SAPHIR in Würenlingen bei einem thermischen Neutronenfluss von  $2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  bestrahlt. Die Bestrahlungsdauer wurde den Halbwertszeiten der gesuchten Spaltprodukt nuklide angepasst. Nach der Bestrahlung wurden die Auffangfolien von der  $^{249}\text{Cf}$ -Quelle getrennt und chemisch aufgelöst. Die  $^{249}\text{Cf}$ -Quelle konnte sofort wieder für eine neue Bestrahlung verwendet werden. Die Al-Folien wurden in 6N HCl unter Zugabe von einigen Tropfen HF aufgelöst, die organischen Folien in heisser, konzentrierter  $\text{H}_2\text{SO}_4 + \text{HClO}_4$ . Die Spaltausbeuten von 25 Nukliden und einem abgeschirmten Nuklid wurden unter Anwendung radiochemischer Standardmethoden (Zugabe von Trägerlösungen, radiochemische Reinigung, Messung dicker Proben) bestimmt. Die Spaltausbeuten der interessierenden Nuklide in der  $^{249}\text{Cf}$ -Spaltung wurden dabei relativ zu den bekannten Ausbeuten bei der Spaltung von  $^{235}\text{U}$  [9] gemessen.

*Messen der Proben.* Die radiochemisch gereinigten Proben wurden auf Endfenster- $\beta$ -Proportionalzählern (wenn nötig mit einem Nulleffekt  $\leq 1$ ) und/oder  $\gamma$ -Spektrometern mit NaJ (Ti) oder GeLi-Detektoren gemessen. In jeder Probe wurde der Zerfall der Radionuklide während mehrerer Halbwertszeiten verfolgt. Wenn die Aktivität der Proben die Aufnahme von  $\gamma$ -Spektren ermöglichte, wurde der Zerfall eines oder mehrerer charakteristischer Photopike gemessen. Komplexe Zerfallskurven wurden graphisch analysiert. Aus jeder bestrahlten Probe wurden für die Normalisierung der einzelnen Experimente untereinander  $^{132}\text{Te}$  und/oder  $^{141}\text{Ce}$  als Standard-Radioisotope isoliert. Die Spaltausbeuten wurden nach der von RAVINDRAN und Mitarbeitern [5] angegebenen Methode berechnet. Die Aktivität jeder Probe wurde entsprechend der chemischen Ausbeute korrigiert. Andere Korrekturen fallen bei dieser Vergleichsmethode weg. Für die beiden Standard-Radioisotope wurden vorerst bei der Spaltung von  $^{249}\text{Cf}$  willkürliche relative Ausbeuten angenommen; die so erhaltene Massenverteilungskurve wurde dann auf eine totale Spaltausbeute von 200% (zwei Spaltfragmente pro Spalt ereignis) normalisiert.

**3. Resultate und Diskussion.** –  $^{249}\text{Cf}$  ist das schwerste mit thermischen Neutronen spaltbare Nuklid, dessen Massenverteilung bis jetzt bestimmt wurde. Die Spaltausbeuten der 25 in dieser Arbeit gemessenen Nuklide sind in Tabelle I zusammengestellt. Die unabhängige Spaltausbeute des abgeschirmten Nuklids  $^{136}\text{Cs}$  wird in Tabelle II im Zusammenhang mit den Berechnungen über die Ladungsverteilung bei der Spaltung von  $^{249}\text{Cf}$  gesondert aufgeführt. Die angegebenen Fehler bei den gemessenen

Spaltausbeuten schliessen eine Standardabweichung bei den experimentellen Bestimmungen und Unsicherheiten in den verwendeten Spaltausbeuten von  $^{235}\text{U}$  ein. Diese Unsicherheiten in den Uranspaltausbeuten wurden auf 5–10% geschätzt.

Tabelle I. *Spaltausbeuten bei der durch thermische Neutronen induzierten Spaltung von  $^{249}\text{Cf}$*

Spaltprodukt	Messmethode	Anzahl der Bestimmungen	Spaltausbeute %
$^{92}\text{Sr}$	$\beta, \gamma$	1	$1,17 \pm 0,29$
$^{95}\text{Zr}$	$\beta, \gamma$	3	$1,72 \pm 0,26$
$^{97}\text{Zr}$	$\beta, \gamma$	3	$2,35 \pm 0,46$
$^{99}\text{Mo}$	$\beta, \gamma$	4	$3,42 \pm 0,24$
$^{103}\text{Ru}$	$\beta, \gamma$	3	$5,27 \pm 0,62$
$^{105}\text{Ru}$	$\beta, \gamma$	2	$5,49 \pm 0,66$
$^{106}\text{Ru}$	$\beta$	3	$5,09 \pm 1,01$
$^{109}\text{Pd}$	$\beta$	1	$4,92 \pm 1,23$
$^{111}\text{Ag}$	$\beta, \gamma$	8	$5,16 \pm 0,56$
$^{112}\text{Pd}$	$\beta$	3	$3,48 \pm 0,56$
$^{113}\text{Ag}$	$\beta, \gamma$	7	$2,92 \pm 0,32$
$^{115}\text{Cd}$	$\beta$	4	$2,46 \pm 0,49$
$^{121g}\text{Sn}$	$\beta$	3	$0,34 \pm 0,09$
$^{125s}\text{Sn}$	$\beta$	6	$0,24 \pm 0,06$
$^{127}\text{Sb}$	$\beta$	3	$1,23 \pm 0,29$
$^{129m}\text{Te}$	$\beta, \gamma$	6	$2,19 \pm 0,33$
$^{131}\text{I}$	$\beta, \gamma$	2	$3,01 \pm 0,45$
$^{132}\text{Tc}$	$\beta, \gamma$	9	$3,95 \pm 0,28$
$^{133}\text{I}$	$\beta, \gamma$	2	$5,09 \pm 0,51$
$^{137}\text{Cs}$	$\beta$	2	$6,90 \pm 1,03$
$^{140}\text{Ba}$	$\beta, \gamma$	4	$4,84 \pm 1,21$
$^{141}\text{Ce}$	$\beta, \gamma$	16	$6,34 \pm 0,38$
$^{143}\text{Ce}$	$\beta, \gamma$	10	$4,90 \pm 0,28$
$^{144}\text{Ce}$	$\beta$	10	$4,62 \pm 0,28$
$^{147}\text{Nd}$	$\gamma$	2	$2,62 \pm 0,39$

Tabelle II. *Unabhängige Spaltausbeute von  $^{136}\text{Cs}$  und empirischer Wert für  $Zp$*

Unabhängige Spaltausbeute für $^{235}\text{U}$	$6,0 \times 10^{-3}\%$	[9]
Unabhängige Spaltausbeute für $^{249}\text{Cf}$	$0,32 \pm 0,06\%$	
Kettenausbeute für $^{249}\text{Cf}$	$5,8\%$	
Fraktionale Kettenausbeute	$0,055 \pm 0,011$	
$Zp$ (empirisch)	$53,5 \pm 0,15$	
Geschätzte primäre Masse ( $A'$ )	$137,5 \pm 0,2^a)$	
$Zp - A' (Z_F/A_F)^b)$	$-0,40 \pm 0,15$	

<sup>a)</sup> Die vom Primärfragment abgegebene Neutronenzahl wurde auf 1,5 Neutronen geschätzt.

<sup>b)</sup>  $Z_F/A_F$ : Ladungs-zu-Massen-Verhältnis des spaltenden Kerns = Ladungsdichte.

Mit den Spaltausbeuten der Tabelle I wurde die in der Figur dargestellte Massenverteilungskurve konstruiert. Die gemessenen Punkte liegen unter Berücksichtigung der Fehler im allgemeinen auf einer glatten Kurve. Die zum Teil recht grossen Fehler verunmöglichen jedoch die Feststellung von Feinstrukturen. Die Kurve ist wie bei allen bis jetzt bekannten Fällen niederenergetischer Kernspaltung asymmetrisch. Das Maximum des leichten Massenpiks liegt bei der Massenzahl 106, dasjenige des schwe-

ren Piks bei Masse 139. Der Boden des Tales zwischen den beiden Höckern konnte nicht erfasst werden; die Wahrscheinlichkeit für eine symmetrische Spaltung (zwei gleich schwere Spaltfragmente) scheint deshalb klein zu sein. Das Pik-zu-Tal-Verhältnis ist  $> 30$ .

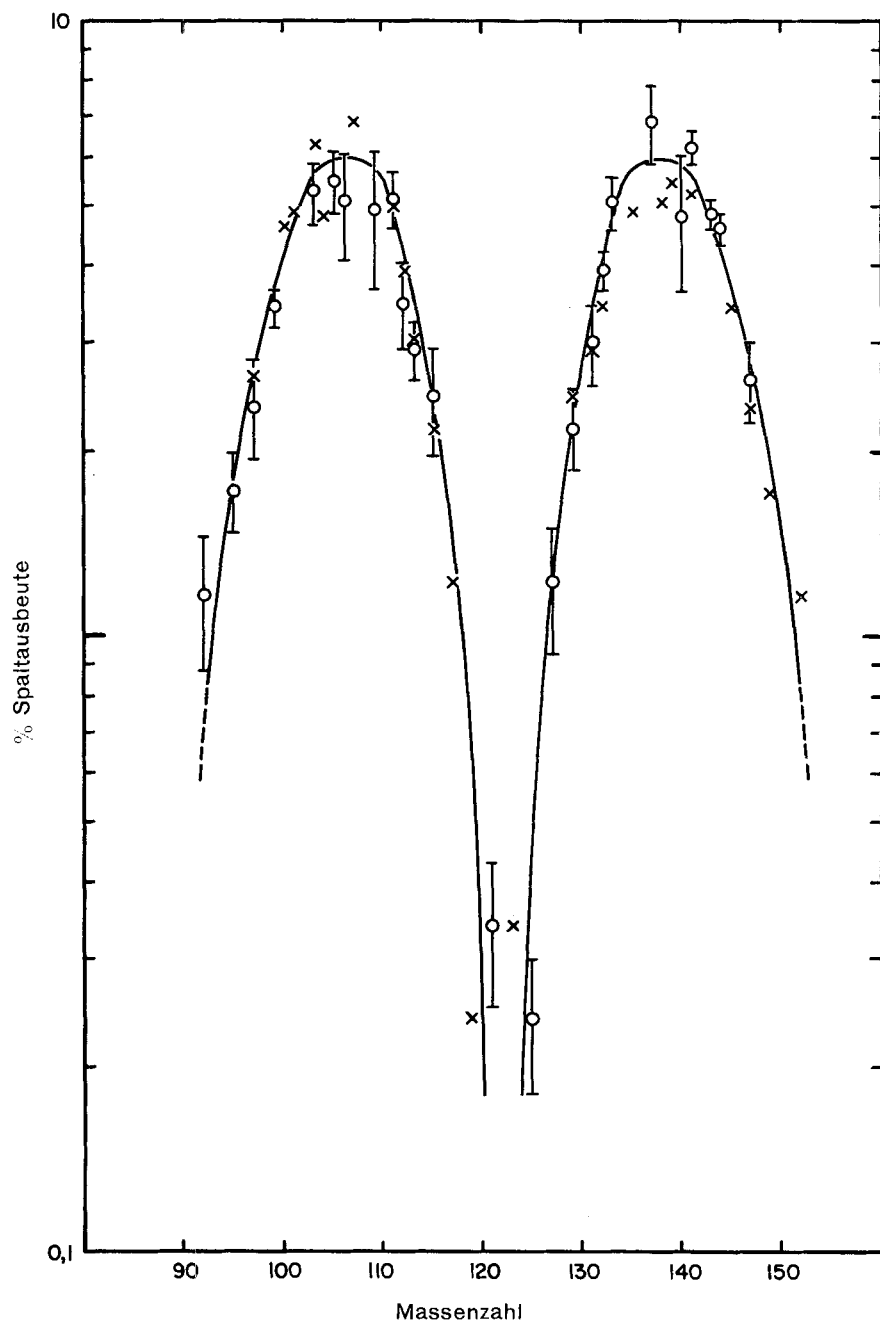
Die volle Breite der Pike in halber Höhe beträgt 16 Masseneinheiten. Die volle Breite in einem Zehntel der Pikhöhe kann auf ungefähr 28 Masseneinheiten geschätzt werden. Da die Bestimmung von Nukliden mit sehr kleinen Spaltausbeuten der geringen Menge an  $^{249}\text{Cf}$  wegen grosse experimentelle Schwierigkeiten bereitet, musste vorläufig auf eine genaue Messung der Breite in  $1/10$  Höhe verzichtet werden. Diesbezügliche Arbeiten sind noch im Gange.

Die gemessenen Punkte können an einer Ebene durch Massenzahl 122 reflektiert werden. Daraus lässt sich ein Wert für  $\bar{\nu}$  (mittlere Zahl der pro Spaltereignis emittierten Neutronen) von  $6 \pm 1,5$  Neutronen errechnen. Dieser Wert scheint etwas zu hoch zu sein, doch dürfte der wahre Wert noch innerhalb des angegebenen Fehlers liegen.

Die Massenverteilungskurve weist eine gewisse Ähnlichkeit mit derjenigen für die Spaltung von  $^{245}\text{Cm}$  [1] auf. Wie erwartet, verschiebt sich der leichte Massenpik noch etwas mehr gegen schwere Massen hin als bei  $^{245}\text{Cm}$  (Masse 104); auch die bereits beim  $^{245}\text{Cm}$  und  $^{252}\text{Cf}$  festgestellte kleine Verschiebung des schweren Piks scheint signifikant zu sein ( $^{245}\text{Cm}$ : Masse 138;  $^{252}\text{Cf}$ : Masse 142). Die gefundenen Positionen für beide Pike bestätigen Werte, die aus systematischen Darstellungen für die Piklagen in Massenverteilungen zahlreicher spaltbarer Nuklide erhalten werden können [10]. Aus diesen systematischen Darstellungen geht hervor, dass die Lage der schweren Spaltfragmentgruppe über einen Bereich von ungefähr 18 Masseneinheiten bei Massenzahl  $138,5 \pm 2,5$  fixiert bleibt, während sich der leichte Pik über denselben Massenbereich linear mit einer Neigung von 1 gegen schwerere Massen hin verschiebt. Diese Gesetzmässigkeit wird, wie bereits in der Einleitung zu dieser Arbeit erwähnt wurde, von den leichteren spaltbaren Nukliden erfüllt, während bei den schwersten Nukliden die Zunahme in der Masse des spaltenden Kerns wenigstens zum Teil auch vom schweren Pik aufgenommen wird, was in einer Verschiebung beider Pike resultiert. Die Verschiebung des schweren Piks gegen höhere Massenzahlen hin macht sich vor allem auf seiner schweren Flanke bemerkbar; die leichte Flanke weist wohl wegen ihrer doppelt magischen Konfiguration grössere Stabilität auf.

Die gefundenen Breiten der Massenpike stimmen ebenfalls sehr gut mit Werten überein, die aus systematischen Darstellungen von Pikbreiten für Massenverteilungen zahlreicher Nuklide [10] abgeleitet werden können. Eindeutig kann festgestellt werden, dass die Breiten der Pike mit zunehmender Masse des spaltenden Kerns zunehmen. Die Zunahme wird besonders deutlich, wenn man die Breiten bei  $1/10$  der Pikhöhe betrachtet, während sie in halber Höhe kaum wahrnehmbar ist.

Die unabhängige Spaltausbeute des abgeschirmten Nuklids  $^{136}\text{Cs}$  wurde in einer Doppelbestimmung ermittelt. Sie ist zusammen mit der daraus resultierenden Ladungsverteilung in Tabelle II aufgeführt. Die Kettenausbeute von  $^{136}\text{Cs}$  für die  $^{249}\text{Cf}$ -Spaltung wurde der glatten Massenverteilungskurve der Figur entnommen. Der empirische Wert für die wahrscheinlichste Ladung  $Zp$  wurde aus der fraktionalen Kettenausbeute unter der Annahme einer GAUSS'schen Ladungsverteilung mit einem  $\sigma$  von  $0,62 \pm 0,06$  [3] ermittelt. Dieser Wert von  $Zp$  stimmt gut überein mit dem  $Zp$ -Wert, der mit dem Postulat gleicher Ladungsverschiebung (equal charge displacement =



Massenverteilungskurve für die durch thermische Neutronen induzierte Spaltung von  $^{249}\text{Cf}$

○ gemessene Punkte, × reflektierte Punkte

ECD) [11] erhalten wird. Die Abweichung von  $Zp$  von  $Z_{\text{UCD}}$  bei unveränderter Ladungsverteilung (siehe Einleitung) beträgt  $-0,40 \pm 0,15$  Ladungseinheiten. Dieser Wert stimmt mit den Ladungsverteilungen bei anderen Fällen von niederenergetischer Kernspaltung überein [1] [3] [4] [5] [6].

Die Autoren möchten der «Heavy Element Group» des ARGONNE NATIONAL LABORATORY (USA) für die leihweise Überlassung der  $^{249}\text{Cf}$ -Quelle bestens danken. Herrn Dr. P. BAERTSCHI sind wir für sein Interesse und für die Unterstützung dieser Arbeit und Herrn Dr. A. WYTENBACH für die Benutzung seiner Messeinrichtungen zu Dank verpflichtet. Einer der Autoren (K.F.F.) dankt dem EIR und ANL für die Ermöglichung seines Aufenthaltes in Würenlingen.

Die Arbeit wurde teilweise durch Mittel des SCHWEIZERISCHEN NATIONALFONDS unterstützt (Kredite Nr. 4482 und 4964).

#### LITERATURVERZEICHNIS

- [1] H. R. VON GUNTEN, K. F. FLYNN & L. E. GLENDENIN, *Physic. Rev.* **161**, 1192 (1967).
- [2] W. E. NERVIK, *Physic. Rev.* **119**, 1685 (1960).
- [3] A. C. WAHL, R. L. FERGUSON, D. R. NETHAWAY, D. E. TROUTNER & K. WOLFSBERG, *Physic. Rev.* **126**, 1112 (1962).
- [4] K. WOLFSBERG, *Physic. Rev.* **137**, B929 (1965); H. R. VON GUNTEN, K. F. FLYNN & L. E. GLENDENIN, *J. inorg. nucl. Chemistry* **31**, 3357 (1969). L. E. GLENDENIN & J. P. UNIK, *Physic. Rev.* **140**, B1301 (1965).
- [5] N. RAVINDRAN, K. F. FLYNN & L. E. GLENDENIN, *J. inorg. nucl. Chemistry* **28**, 921 (1966).
- [6] K. F. FLYNN & H. R. VON GUNTEN, Paper SM 122/1, 2nd Symposium on the Physics and Chemistry of Fission, IAEA, Vienna 1969.
- [7] D. METTA, H. DIAMOND, R. F. BARNES, J. MILSTED, J. GRAY, JR., D. J. HENDERSON & C. M. STEVENS, *J. inorg. nucl. Chemistry* **27**, 33 (1965).
- [8] W. SEELMANN-EGGEBERT, G. PFENNIG & H. MÜNZEL, «Nuklidkarte», 3. Auflage. Bundesminister für wissenschaftliche Forschung, Bonn 1968.
- [9] M. E. MEEK & B. F. RIDER, APED-5398-A (1968).
- [10] H. R. VON GUNTEN, *Actinides Reviews* **1**, 275 (1969).
- [11] L. E. GLENDENIN, C. D. CORYELL & R. R. EDWARDS, «Radiochemical Studies: The Fission Products» (Edited by C. D. CORYELL & N. SUGARMAN), McGraw-Hill, New York 1951. *Nat. Nucl. Energy Ser. Vol. 9, Div. IV*, p. 489.

## 224. Derivate des 5,6-Dihydro-*p*-dithiin-2,3-dicarbonsäure-anhydrids, I: Imide

von H. R. Schweizer<sup>1)</sup>

EASTMAN RESEARCH AG, Zürich

(12. IX. 69)

*Summary.* 5,6-Dihydro-*p*-dithiin-2,3-dicarboxylic anhydride reacts with primary amines quite readily to form the substituted imides. The imide formation occurs much more easily than with maleic or phthalic anhydride. The imide and all N-substituted imides have a fairly strong, bright yellow colour. Their absorption spectra differ considerably from those of the anhydride, ester and dinitrile. Electron-attracting substituents on the imide nitrogen increase the absorption maximum somewhat, while strongly electron-releasing groups decrease it, and may even shift it to

<sup>1)</sup> Jetzige Adresse: c/o J. R. GEIGY AG, Departement Forschung Farbstoffe, 4000 Basel 21. – Allfällige Zuschriften sind an den Autor erbeten.