

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

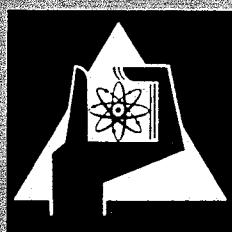
April 1971

KFK 1338

Institut für Radiochemie

**Erzeugung von Einsteinium
in Reaktoren mittleren Neutronenflusses**

S. H. Eberle, J. Reinhardt, E. Gantner, Ch. Krückeberg



**GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.
KARLSRUHE**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

April 1971

K F K - 1338

Institut für Radiochemie

ERZEUGUNG VON EINSTEINIUM IN REAKTOREN MITTLEREN NEUTRONENFLUSSES

S.H. Eberle, J. Reinhardt, E. Gantner, Ch. Krückeberg

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H.

Zusammenfassung

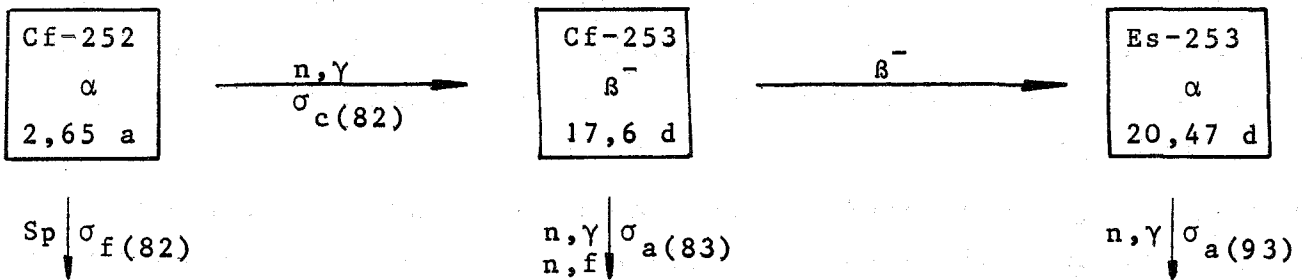
Der Neutroneneinfangsquerschnitt und das Resonanzintegral des Cf-252 wurden durch Analyse eines im FR2 bestrahlten Californiums ermittelt: $\sigma_{c,o} = 20,0$ barn, $I_c = 40$. Mit diesen Werten wurde die Ausbeute an Cf-253 und Es-253 bei Neutronenflüssen von $1 \cdot 10^{13}$ bis $5 \cdot 10^{14}$ $N_{th}/cm^2 \cdot sec$ als Funktion der Bestrahlungszeit berechnet; die Resultate sind in einem Diagramm und Tabellen zusammengestellt. Die Erzeugung von Es-253 in Reaktoren mittleren Neutronenflusses ergibt akzeptable Ausbeuten.

Abstract

The neutron capture cross section and the resonance integral of Cf-252 have been determined by analysis of Californium, irradiated in the FR2 reactor: $\sigma_{c,o} = 20,0$ barn, $I_c = 40$. Using these values the yields of Cf-253 and Es-253 for neutron fluxes between $1 \cdot 10^{13}$ and $5 \cdot 10^{14}$ $N_{th}/cm^2 \cdot sec$ as a function of the irradiation time have been calculated; the results are given in a diagram and in tables. The production of Es-253 in reactors of medium neutron flux gives acceptable yields.

Für Indikatorversuche mit Einsteinium kommt das Nuklid Es-253 in Frage, das sich durch Bestrahlen von Cf-252 im Kernreaktor herstellen läßt. Aufgrund der Halbwertszeit von 20,47 Tagen kann man es praktisch nicht auf Vorrat halten, sondern muß es jeweils bei Bedarf erzeugen. Für viele Versuche genügt das Gemisch von Es-253 und Cf-252 wie es nach der Bestrahlung vorliegt und die chemische Trennung kann entfallen, da sich beide Nuklide α -spektrometrisch nebeneinander gut nachweisen lassen (Cf-252 $E_{\alpha} = 6,12$ MeV, Es-253 $E_{\alpha} = 6,64$ MeV); allerdings geht das eingesetzte Californium, das ja nur zu einem kleinen Teil in Es umgewandelt wurde, verloren. Der Verlust ist tragbar, da neuerdings der Preis des Californiums stark herabgesetzt wurde ¹⁾ und größere Mengen - bis zu Milligrammen - verfügbar sind.

Das Einsteinium bildet sich nach folgendem Reaktionsschema:



Bisher wurden für die Einsteiniumsintese Hochflußreaktoren verwendet, die in der Bundesrepublik nicht vorhanden sind. Wir untersuchten, ob bei mittlerem Fluß, z.B. im FR2, akzeptable Es-Ausbeuten möglich sind. Der entscheidende unveränderliche Parameter für die Einsteiniumerzeugung ist der Einfangsquerschnitt des Cf-252; einige neuere Angaben darüber sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

TABELLE 1 Literaturdaten des Neutronen-Einfangsquerschnittes von Cf-252 (barn)

Reaktion	σ	I^*	Jahr	Literatur
n, γ (eff)	30		1954	1
n, γ	30	1 800	1967	2
Absorption	8,6	42	1968	3
n, γ (eff)	7		1968	4
n, γ	4	0	1969	6
n, γ (eff)	38-50		1968	5
n, γ	20,4	43,5	1969	7

I^* : Resonanzintegral

1) ca. 10 000 \$/mg

Die Daten basieren in den meisten Fällen (1-5) auf der Analyse von Reaktorbestrahlungen, die von Pu-242 oder Cm-244 ausgingen, wobei die Wirkungsquerschnitte aller Nuklide der Aufbaukette an die gemessenen Ausbeuten angeglichen wurden. Mit einem derartigen Querschnittsatz ergibt die Berechnung die Zusammensetzung des Nuklidgemisches nach der Bestrahlung richtig, auch wenn einzelne Querschnitte falsch sind, da sich die Fehler kompensieren können. Das bedeutet, daß der Wirkungsquerschnitt eines Nuklids in verschiedenen Querschnittsätzen verschieden sein kann, ohne daß damit die Querschnittsätze insgesamt falsch sind; zur verlässlichen Berechnung des Umsatzes eines reinen Zwischennuklids sind jedoch derartige Einzelwerte nicht geeignet. Das trifft für die σ -Angaben in Zitat 1-5 zu. Literaturstelle (6) und (7) geben σ_c -Werte an, die aus Bestrahlungen von Californium berechnet wurden und damit keinen Kompensationsfehler enthalten sollten, jedoch unterscheiden sich auch diese noch um mehr als den Faktor zwei. Zur Beantwortung der Frage, bei welchem Fluß eine Es-Erzeugung noch sinnvoll ist, wird ein genauerer Wert von σ_{eff} benötigt.

Wir berichten im folgenden über den Einfangsquerschnitt von Cf-252 im FR2 und über die Ausbeute an Es-253 bei mittlerem Fluß in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit.

1. Bestimmung des Einfangsquerschnittes von Cf-252

Bestrahlung

Salpetersaure Lösungen mit je etwa 0,045 μg Californium (Zusammensetzung: 67,0% Cf-252, 8,1% Cf-251, 15,9% Cf-250, 9,0% Cf-249, berechnet aus dem α -Spektrum) wurden in Quarzreagenzgläsern von ca. 0,7 cm Innendurchmesser zur Trockene eingedampft. Die zu Ampullen von ca. 1,5 cm Länge abgeschmolzenen Reagenzgläser wurden zusammen mit einem Flußdetektor (Al/Co-Draht) in eine Edelstahlkapsel eingeschweißt und diese im Isotopenkanal des Karlsruher FR2 unter Luftkühlung bestrahlt. Eine Ampulle wurde zusätzlich mit 1 mm starkem Cd-Blech abgeschirmt. Die Neutronendosis wurde durch Messen der γ -Aktivität des Detektordrahtes und aus den bekannten Anteilen des epithermischen und schnellen Flusses bestimmt; die Genauigkeit ist $\pm 5\%$. Tabelle 2 enthält die Bestrahlungsdaten.

Die berechnete Spaltwärmeleistung des Californiums ist mit ca. 10^{-4}

Watt bei $5 \cdot 10^{13} N_{th}/cm^2 \cdot sec$ weit geringer als die Aufheizung der Kapsel durch γ -Strahlung (ca. 0,5 Watt/g). Eine besondere Kühlung war daher nicht erforderlich.

TABELLE 2 Bestrahlungsdaten

No.	Stunden h	therm. Fluß $n/cm^2 \cdot sec$	epitherm. Fluß $n/cm^2 \cdot sec$	schneller Fluß $n/cm^2 \cdot sec$
1	73,58	$6,23 \cdot 10^{13}$	$2,0 \cdot 10^{12}$	$3 \cdot 10^{12}$
2	93	$7,70 \cdot 10^{13}$	$1,62 \cdot 10^{12}$	-
3(m,Cd)	93	-	$1,07 \cdot 10^{12}$	-

Präparierung und Messung

Die bestrahlte Quarzampulle (Dosisleistung < 10 mrem/h) wurde geöffnet, mit Salpetersäure ausgekocht und die Lösung auf 10,0 ml aufgefüllt. Aus einem Aliquot von 0,5 ml wurden Cf und Es durch Elektrodeposition auf ein Pt-Blech abgeschieden. Die Aktivitätsmessungen wurden mit einem Si-Sperrschichtzähler im Vakuum vorgenommen (ca. 1% geometrische Zählraumbeute), der an einen 512-Kanal-Analysator angeschlossen war und je nach Verstärkung α -Impulse bzw. α - und Spontanspaltimpulse registriert.

Ergebnisse

Die Auflösung der erhaltenen α -Spektren war so gut, daß auf die chemische Trennung des Einsteiniums von Californium verzichtet werden konnte.

Abbildung 1 zeigt das α -Spektrum von unbestrahltem und bestrahltem Material; es ist ersichtlich, daß sich ca. 1 Aktivitäts-% Es-253 bildete und daß sich die Isotopenzusammensetzung des Californiums durch die kurze Bestrahlung nicht merkbar veränderte. Eine Berechnung ergab, daß Cf-249, Cf-250 und Cf-251 je zu einigen Prozent abbrennen, die Menge an Cf-252 sich jedoch um weniger als 0,1% verändert. Die α -Spektrometrie bestätigte das innerhalb der Meßgenauigkeit ($\pm 1\%$): der Anteil des Cf-252 an der Cf- α -Impulssumme betrug vor der Bestrahlung 94,70% und danach 94,74%. Für die Berechnung des Wirkungsquerschnittes wurde daher der Verbrauch des Cf-252 während der Bestrahlung nicht berücksichtigt.

Die aus dem Spektrum "nach der Bestrahlung" (Abbildung 1) ermittelte α -Energie des Es-253 beträgt übereinstimmend mit der Literatur 6,64 MeV.

Grundlage der Berechnung des Wirkungsquerschnittes ist die am Bestrahlungsende vorhandene Menge Cf-253 (${}^{253}_{83}\text{O}$) und Es-253 (${}^{253}_{93}\text{O}$). Beide Größen lassen sich nicht direkt erhalten; einerseits, weil Cf-253 als β -Strahler ohne chemische Trennung von den Spaltprodukten nicht meßbar ist und andererseits, weil mit der α -Messung erst einige Stunden nach Bestrahlungsende begonnen werden kann und in der Zwischenzeit bereits ein Vielfaches an Es-253 aus dem Cf-253 nachwächst. Die aus den α -Spektren ermittelten Impulssummen sind in Tabelle 3 zusammengestellt.

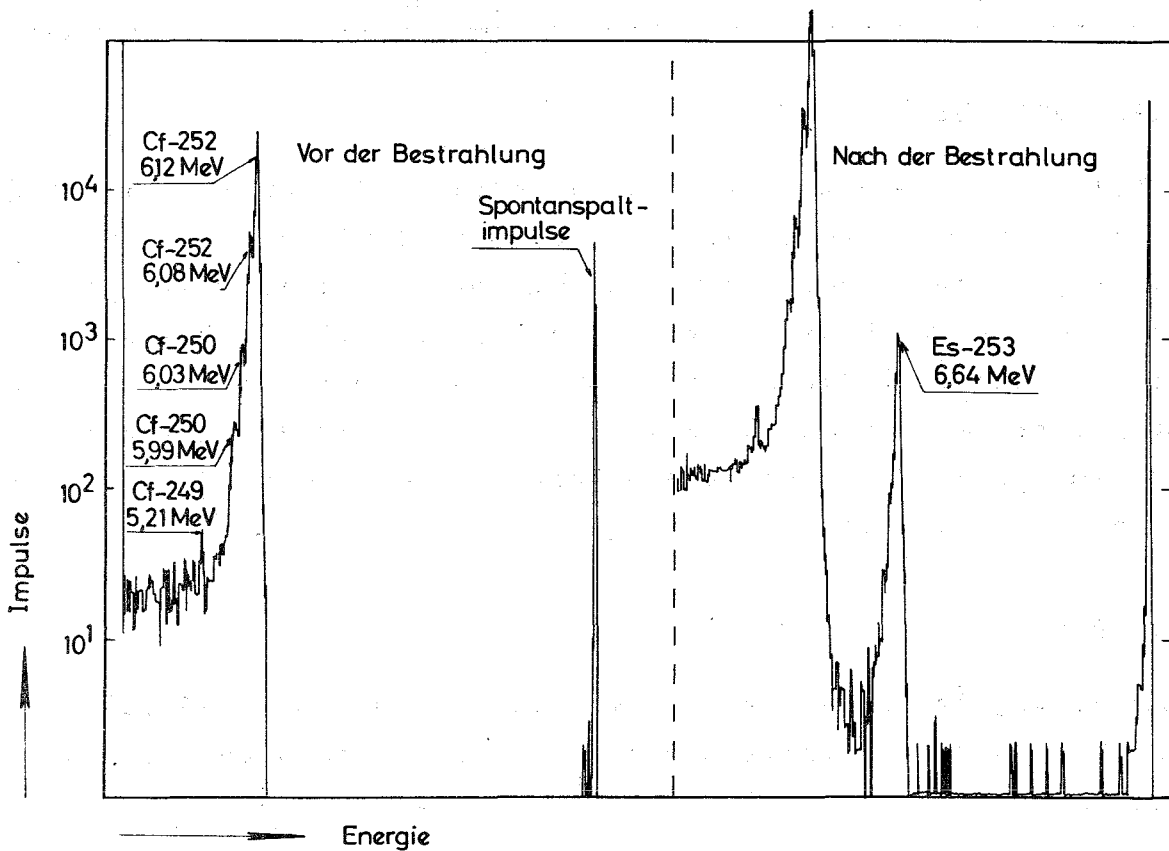


ABBILDUNG 1 Impulsspektren von bestrahltem und unbestrahltem Californium

TABELLE 3 Gemessene Impulssummen

Versuch	Zeit nach Bestr.-Ende (10 ⁵) sec	$\alpha(\text{Cf-252/250})$ (10 ⁵)/100 min	$\alpha(\text{Es-253})$ (10 ³)/100 min	Spontanspaltung (10 ⁴)/100 min
1	3,496	6,149	1,60	3,93
	6,124	6,130	2,32	3,94
	7,852*	6,120	2,67	3,91
	9,652	6,058	2,93	3,884
	12,19	6,059	3,24	3,856
	14,75	6,010	3,48	3,843
	16,46	6,013	3,58	3,857
	19,01	6,026	3,65	3,873
2	0,916	7,056	1,74	4,564
	1,792	7,081	2,27	4,527
	2,707	7,037	2,79	4,507
	5,263	7,003	3,81	4,516
	6,199	6,973	4,10	4,510
	6,983*	7,008	4,62	4,497
	7,927	7,012	4,84	4,520
	8,712	6,962	5,06	4,511
12,17	6,942	5,75	4,490	
3	0,145	7,012	0,025	
	0,991	6,994	0,050	
	1,879*	7,013	0,084	
	2,560	7,004	0,070	
	5,335	7,116	0,120	
	6,055	6,989	0,092	
	7,778	6,980	0,122	

* Bezugswert für Korrektur auf gleiche Detektorempfindlichkeit

Abbildung 2 zeigt den Verlauf der Es-253-Aktivität von Probe 1 bezogen auf die eingesetzte Cf-Aktivität über einen Zeitraum von drei Wochen nach Bestrahlungsende.

Zur Auswertung wurden die zu verschiedenen Zeiten gemessenen Zählraten mit der Formel

$$Z(\text{Es-253})_{t,\text{korr}} = Z(\text{Es-253})_t \cdot Z(\text{Cf-252})_t / Z(\text{Cf-252})_{B,t}$$

auf gleiche Detektorempfindlichkeit korrigiert; $Z(\text{Cf-252})_{B,t}$ ist die

auf den Meßzeitpunkt "t" durch Berücksichtigen des rad. Zerfalls (0,0717% je Tag) umgerechnete Cf-252-Zählrate einer Bezugsmessung.

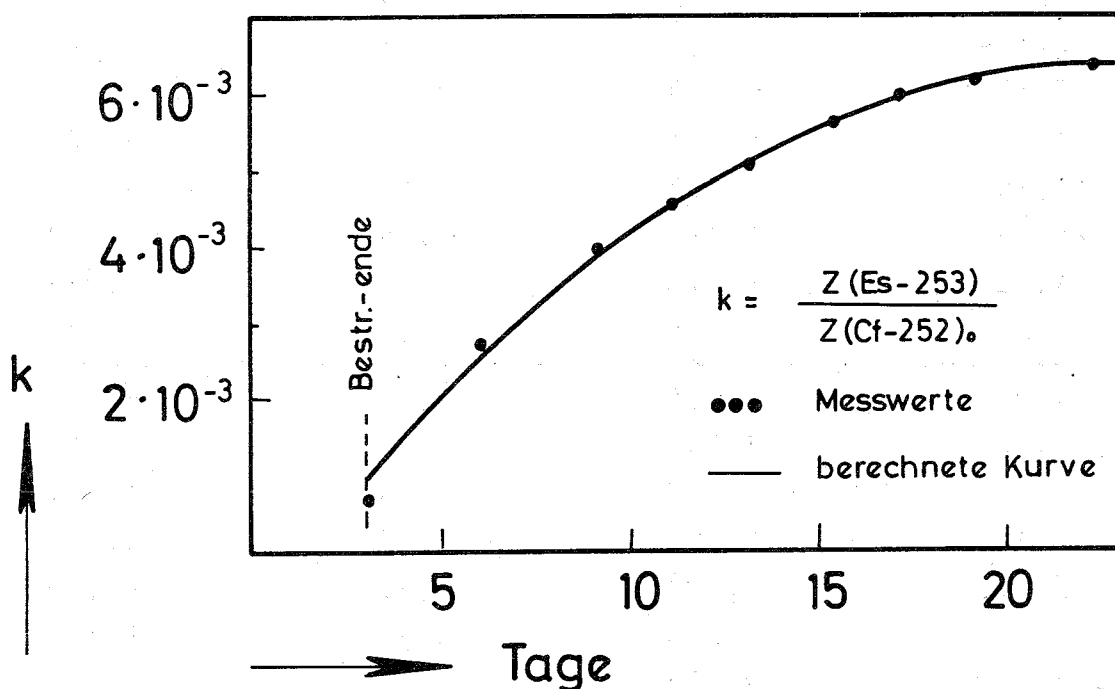


ABBILDUNG 2 Aktivitätsverhältnis Es-253:Cf-252

Für das Mutter-Tochter-System Cf-253/Es-253 gilt:

$$(1) \quad Z_{93}(t) = Z_{93}(0) \cdot e^{-\lambda_{93}t} + Z_{83}(0) \frac{\lambda_{93}}{\lambda_{93} - \lambda_{83}} (e^{-\lambda_{83}t} - e^{-\lambda_{93}t})$$

- t : Zeit seit Bestrahlungsende
- λ_{82} : $8,307 \cdot 10^{-7} \text{ sec}^{-1}$ Zerfallskonstante des Cf-252
- λ_{83} : $4,503 \cdot 10^{-7} \text{ sec}^{-1}$ Zerfallskonstante des Cf-253 (8)
- λ_{93} : $3,918 \cdot 10^{-7} \text{ sec}^{-1}$ Zerfallskonstante des Es-253 (8)

$$(2) \quad \frac{Z_{93}(t)}{e^{-\lambda_{93} \cdot t}} = Z_{93}(0) + Z_{83}(0) \frac{\lambda_{93}}{\lambda_{83} - \lambda_{93}} (1 - e^{-(\lambda_{83} - \lambda_{93}) \cdot t})$$

$$Y = Z_{93}(t) / e^{-\lambda_{93} \cdot t}$$

$$X = \frac{\lambda_{93}}{\lambda_{83} - \lambda_{93}} (1 - e^{-(\lambda_{83} - \lambda_{93}) \cdot t})$$

$$(3) \quad Y = Z_{93}(0) + Z_{83}(0) \cdot X$$

Durch Auftragen von Y als Funktion von X sollte man bei korrektem λ eine Gerade mit $Z_{93}(0)$ als Ordinatenabschnitt und $Z_{83}(0)$ als Steigung erhalten. Anstelle der Zerfallsraten kann man in Gleichung 2 auch die gemessenen Impulsraten einsetzen, da die Zählwahrscheinlichkeit für Cf-252 und Es-253 gleich ist, wenn sie nebeneinander vorliegen, und zur Querschnittsberechnung nur das Verhältnis der Zerfallsraten benötigt wird. Die X/Y-Kurve ist in Abbildung 3 dargestellt, sie verläuft wie erwartet geradlinig. Damit ist zunächst innerhalb der Zeichengenauigkeit nachgewiesen, daß die eingesetzten Zerfallskonstanten richtig sind. Für die gesuchten Zerfallsraten erhält man nach der Methode der kleinsten Fehlerquadratsumme die Werte der Tabelle 4.

TABELLE 4 Berechnete Impulsraten am Bestrahlungsende

Versuch	Imp./100 min		
	1	2	3
Z_{83} (Es-253)	433 \pm 23	12036 \pm 50	34 \pm 7
Z_{93} (Cf-253)	10552 \pm 62	17443 \pm 190	483 \pm 38
Z_{92} (Cf-252/250)	616250	704900	701890

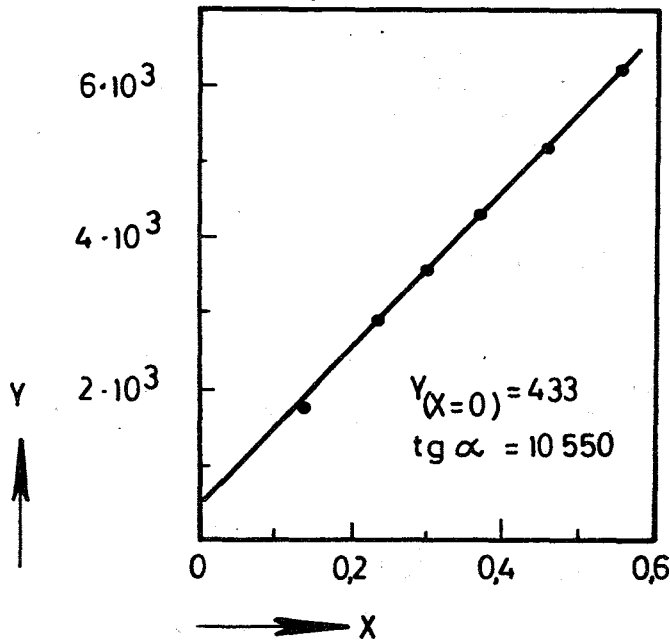


ABBILDUNG 3 Graphische Bestimmung der Zerfallsraten von Es-253 ($Y_{(x=0)}$) und Cf-253 ($\text{tg } \alpha$) am Bestrahlungsende

Die Berechnung des Wirkungsquerschnittes geht von der Batemgleichung aus. Es gilt:

$$(5) \quad N_{83}(t_B) = N_{82}(0) \left[\frac{\Lambda_{82}^*}{\Lambda_{83} - \Lambda_{82}} e^{-\Lambda_{82} t_B} + \frac{\Lambda_{82}^*}{\Lambda_{82} - \Lambda_{83}} e^{-\Lambda_{83} t_B} \right]$$

$$(6) \quad N_{93}(t_B) = N_{82}(0) (C_{82} \cdot e^{-\Lambda_{82} \cdot t_B} + C_{83} \cdot e^{-\Lambda_{83} \cdot t_B} + C_{93} \cdot e^{-\Lambda_{93} \cdot t_B})$$

$$C_{82} = \frac{\Lambda_{82}^* \cdot \Lambda_{83}^*}{(\Lambda_{83} - \Lambda_{82})(\Lambda_{93} - \Lambda_{82})}$$

$$C_{83} = \frac{\Lambda_{82}^* \cdot \Lambda_{83}^*}{(\Lambda_{82} - \Lambda_{83})(\Lambda_{93} - \Lambda_{83})}$$

$$C_{93} = \frac{\Lambda_{82}^* \cdot \Lambda_{83}^*}{(\Lambda_{82} - \Lambda_{93})(\Lambda_{83} - \Lambda_{93})}$$

- Λ_{82}^* = $\sigma_c(82) \cdot \phi_{th}$
- Λ_{82} = $\sigma_a(82) \cdot \phi_{th} + \lambda_{82}$
- Λ_{83}^* = λ_{83}
- Λ_{83} = $\sigma_a(83) \cdot \phi_{th} + \lambda_{83}$
- Λ_{93} = $\sigma_a(93) \cdot \phi_{th} + \lambda_{93}$
- t_B = Bestrahlungszeit
- ϕ_{th} = thermischer Neutronenfluß
- Index 82 = Cf-252
- Index 83 = Cf-253
- Index 93 = Es-253
- Index a = Absorption
- Index c = Einfang

Die numerische Ausführung erfolgte mittels des Rechenprogrammes ISAR2. Für die Konstanten (außer dem gesuchten $\sigma_c(82)$) verwandten wir die bei Gleichung 1 angegebenen λ -Werte und folgende Querschnitte: $\sigma_f(82) = 0,17$ b (2), $\sigma_a(83) = 2600$ b (10) und $\sigma_a(93) = 345$ b (9). $\sigma_f(82)$ und $\sigma_a(93)$ beeinflussen das berechnete $\sigma_c(82)$ nur wenig, eine Änderung um den Faktor 1,5 verursacht weniger als 1% Variation in σ_{82} . Etwas größer ist die Auswirkung von $\sigma_a(83)$, wofür wir den Literaturwert von $\sigma_f(83) = 2\,600 \pm 500$ b einsetzten, $\sigma_c(83) \leq 20$ b (10) wurde vernachlässigt. In Abbildung 4 ist der

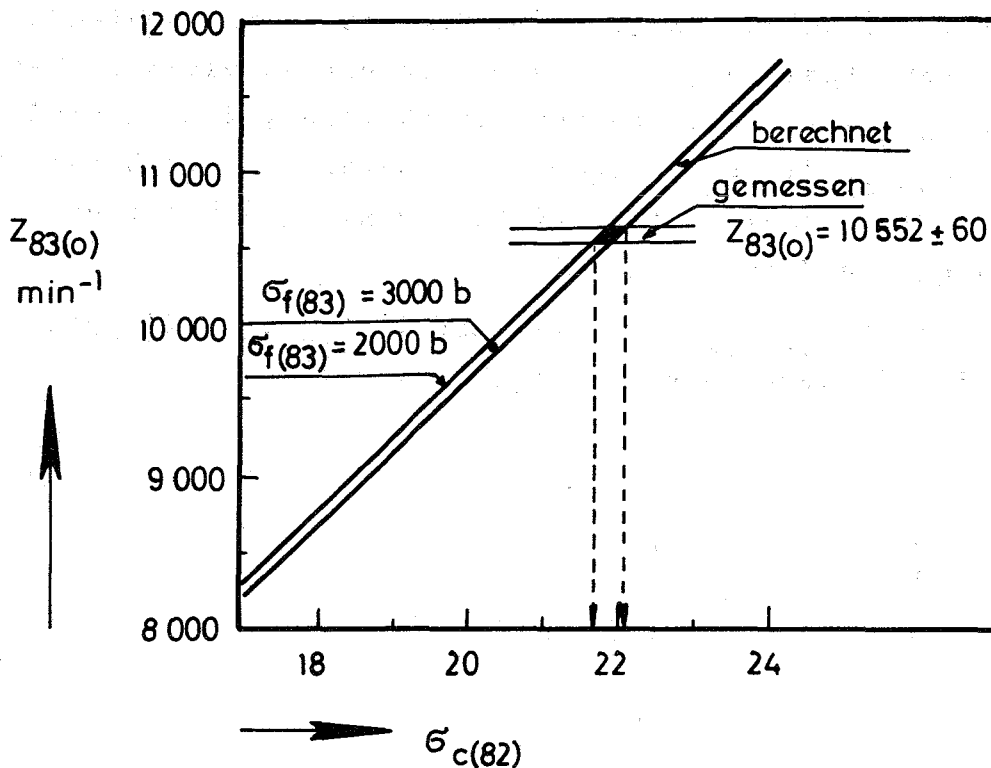


ABBILDUNG 4 Bestimmung des Einfangsquerschnittes von Cf-252 durch Vergleich der berechneten und gemessenen Ausbeute an Cf-253

berechnete Wert von $Z_{83(o)}$ als Funktion von $\sigma_c(82)$ und $\sigma_a(83)$ aufgetragen. Der Schnittpunkt mit der Ordinatenparallele beim experimentellen $Z_{83(o)}$ ergibt $\sigma_c(82)$. Nimmt man für $\sigma_a(83)$ einen Fehlerbereich von ± 500 b an, so ist $\sigma_c(82)$ um $\pm 0,2$ barn unsicher. Der Fehler aufgrund der Ungenauigkeit der Flußmessung ist mit $\pm 5\%$ wesentlich größer. Die so berechneten Querschnitte sind in Tabelle 5 zusammengestellt.

TABELLE 5 Ergebnisse

Versuch	$\frac{\phi_{epi}}{\phi_{th}}$	Cd-Abschirmung	$\sigma_{c,eff}$ barn	σ_{th} barn	I_c barn	$\sigma_{c,o}$
1	0,032	-	21,8 \pm 1,5	20,5		20,2
2	0,021	-	20,8 \pm 1,5	20,0		19,8
3	0,021	1 mm	0,84 \pm 0,08		40 \pm 4	
Mittelwert					40 \pm 4	20 \pm 1,5

Mit dem Mittelwert $\sigma_{c,o} = 20,0$ barn werden die gemessenen $Z_{83(o)}$ innerhalb der Meßgenauigkeit (± 60 Zerf./min) richtig erhalten. Weniger gut ist die Übereinstimmung bei $Z_{93(o)}$: der Rechenwert liegt bei Versuch 1 etwa 10% tiefer und bei Versuch 2 etwa 5% höher als der Meßwert. Die Fehlerquelle liegt vermutlich darin, daß bei der Elektrodeposition Es nicht im gleichen Verhältnis abgeschieden wird wie Cf. Praktische Bedeutung für die Querschnittsberechnung hat das nicht, da für $\sigma_c(82)$ nur die Steigung in Abbildung 2 maßgebend ist, ein Fehler in $Z_{93(o)}$ die Kurve jedoch nur parallel verschiebt. Die ausgezogene Kurve in Abbildung 2 zeigt, wie gut die Übereinstimmung zwischen Messung und Berechnung ist.

Unsere Ergebnisse $\sigma_{c,Cf-252} = 20$ barn und $I_{c,Cf-252} = 40$ barn liegen nahe bei den in (7) angegebenen Werten.

2. Die Einsteiniumbildung bei Bestrahlung von Californium

Zur Ausbeuteberechnung wurden die in Tabelle 6 angegebenen Nuklid-
daten verwendet, die Querschnitte sind auf +1 barn gerundet. Die
Ergebnisse sind in Tabelle 7 bis 12 zusammengestellt; aufgeführt
ist die Veränderung der Nuklidmengen während der Bestrahlung und
der Verlauf der Es-Aktivität nach Bestrahlungsende.

Wie Abbildung 5 zeigt, erreichen Es-253 und Cf-253 abhängig vom
Fluß nach zwei bis vier Halbwertszeiten einen maximalen Wert, da-
nach stehen sie im "laufenden Gleichgewicht" mit Cf-252. Eine an-
gemessene Bestrahlungszeit für etwa die Hälfte der maximal möglichen
Ausbeute ist 10 - 20 Tage ($\phi = 5 \cdot 10^{14}$ bis $2 \cdot 10^{13}$ $N_{th}/cm^2 \cdot sec$).

TABELLE 6 Zerfallskonstanten und Wirkungsquerschnitte
(σ -Werte für einen epithermischen Flußfaktor.
 $R = 0,03$, berechnet nach $\sigma_c = \sigma_{c,o} (1+0,45 \cdot R) + R \cdot I$ (12))

	Zerfallskonstante (sec^{-1})	σ_c (barn)	σ_f (barn)	Literatur
Cf-249	6,244 (-11)*	274	1686	11
Cf-250	1,680 (-9)	1679	-	3
Cf-251	2,422 (-11)	1887	4832	11
Cf-252	8,307 (-9)	21,5	0	d.A.
Cf-253	4,504 (-7)	18	2635	10
Es-253	3,918 (-7)	350	-	9

*6,244 (-11) $\equiv 6,244 \cdot 10^{-11}$

Aufgrund der Nachbildung aus Cf-253 wächst die Zerfallsrate des
Es-253 in dem bestrahlten Präparat nach Bestrahlungsende noch an;
die Zunahme ist um so größer, je kürzer die Bestrahlungszeit (t_B)
war. Abgesehen von Extremfällen sind nach 10 Tagen mindestens 90%
der maximalen Zerfallsrate erreicht oder noch vorhanden, detaillier-
te Angaben können den Tabellen 7 bis 11 entnommen werden. Falls
eine Cf-/Es-Trennung vorgesehen ist, führt man sie zweckmäßig mehr-
mals in längeren Zeitabständen aus, z.B. 5 bis 10 Tage nach Bestrah-
lungsende und dann alle 20 Tage. Auf diese Weise nutzt man auch das
anfangs vorliegende Cf-253 aus. Die in einer Charge erreichbare Aus-
beute beträgt bis 20% Es-253-Aktivität bezogen auf die eingesetzte
Cf-252-Aktivität, das läßt eine Erzeugung von Indikatormengen Es in
Reaktoren mittleren Flusses sinnvoll erscheinen,

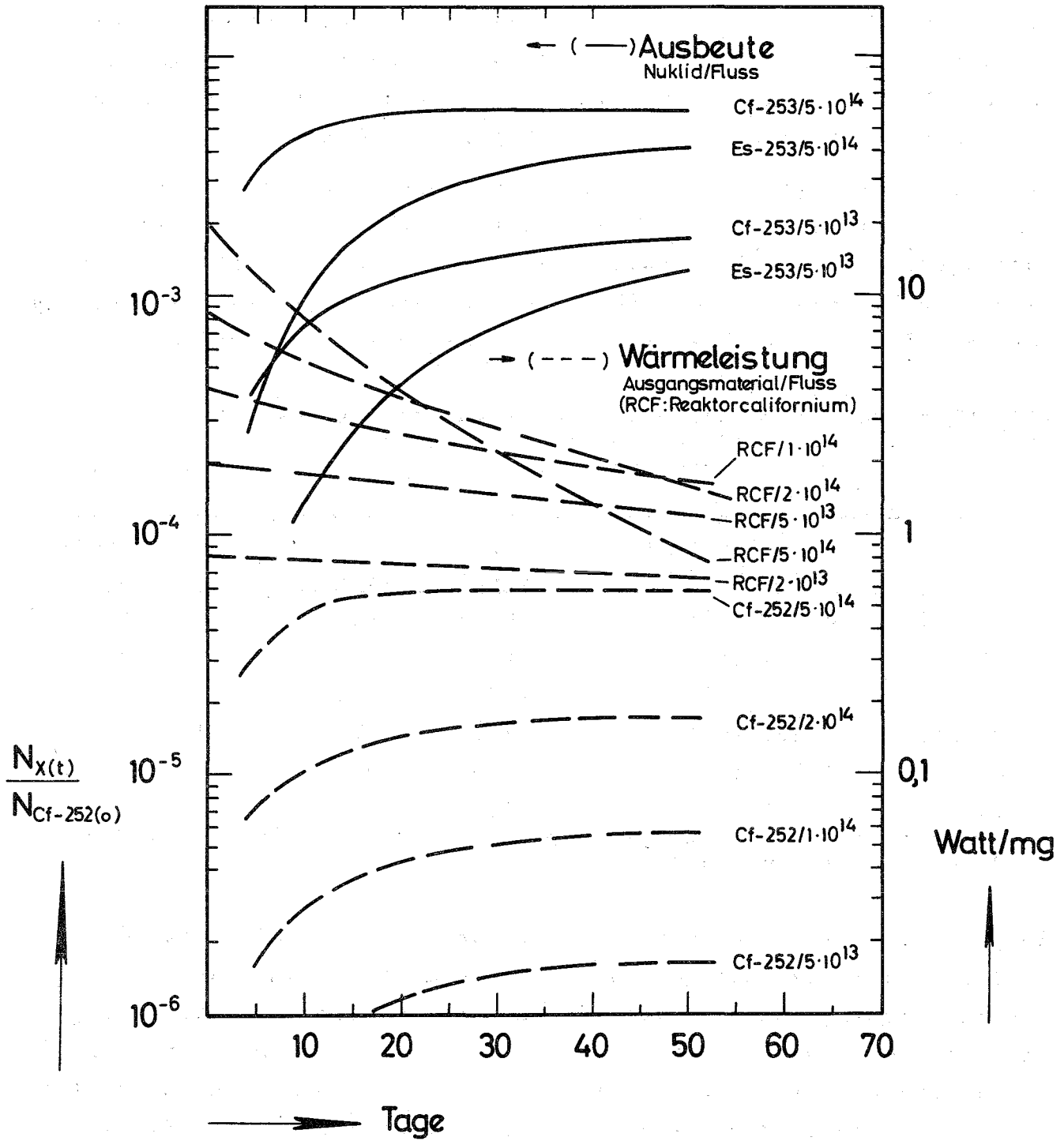


ABBILDUNG 5 Nuklidausbeute und Wärmeleistung beim Bestrahlen von Californium

der Fluß sollte allerdings über $1 \cdot 10^{13} N_{th}/cm^2 \cdot sec$ liegen. Der Anteil des epithermischen Flusses hat keinen wesentlichen Einfluß auf die Ausbeute.

In Abbildung 5 ist außer der Nuklidausbeute auch die Spaltwärmeleistung angegeben. Für reines Cf-252 als Ausgangsmaterial nimmt sie im Laufe der Bestrahlung zu; bei $5 \cdot 10^{14} N_{th}/cm^2 \cdot sec$ werden maximal 0,5 Watt/mg und bei $5 \cdot 10^{13} N_{th}/cm^2 \cdot sec$ maximal 0,016 Watt/mg erreicht. Das aus Reaktoren gewonnene Californium enthält neben Cf-252 stets auch niedrigere Cf-Isotope mit hohem Spaltquerschnitt. Ein Material mit ca. 9% Cf-249 und ca. 8% Cf-251 ergibt etwa die hundertfache Wärmeleistung des reinen Cf-252. Die Aufheizung durch Spaltwärme ist jedoch bei μg -Mengen bis zum Fluß $5 \cdot 10^{14} N_{th}/cm^2 \cdot sec$ ohne praktische Bedeutung.

Literatur

- (1) B.G. Harvey, H.P. Robinson, S.G. Thompson, A. Ghiorso, G.R. Choppin Phys.Rev. 95,581(1954)
- (2) A. Prince Transact.Am.Nucl.Soc. 10,288(1967)
- (3) R.L. Folger, J.A. Smith, L.C. Brown, R.F. Overman, H.P. Holcomb U.S.Natl.Bureau of Standards Special Publ. 299,1279(1968)
- (4) J.A. Smith, C.J. Banick, R.L. Folger, H.P. Holcomb, I.B. Richter NBS-Special Publ. 299,1285(1969)
- (5) W.D. Burch et al. ORNL-4376 (1969)
- (6) ORNL-4272, 113 (1967)
- (7) J. Halperin, C.E. Bemis, R.E. Druschel, J.R. Stodsely Nucl.Sci.Eng. 37,228(1969)1
- (8) R.E. Druschel, J. Halperin, C.E. Bemis ORNL-4437, 28 (1969)
- (9) W.D. Burch, J.E. Bigelov, L.J. King ORNL-4540, 31 (1970)
- (10) C.E. Bemis, R.E. Druschel, J. Halperin ORNL-4437, 22 (1969)
- (11) S.H. Eberle, H.-J. Bleyl Radiochim. Acta (im Druck)
(aus L-t.-Daten berechnet)
- (12) R.W. Stoughton, J. Halperin Nucl.Sci.Eng. 6,100 (1959)

Relative Nuklidmenge während der Bestrahlung

Tage Cf-252 Cf-253 Es-253

Veränderung der relativen Es-253-Zerfallsrate (bez. auf die Cf-252-Zerfallsrate vor der Bestrahlung) des im Reaktor erzeugten Nuklidgemisches nach Bestrahlungsende

Es-253/Cf-252

5	9,962(-1)	1,664(-4)	1,584(-5)	0,00075						
10	9,925(-1)	2,996(-4)	5,577(-5)	0,00202	0,00263					
15	9,887(-1)	4,062(-4)	1,106(-4)	0,002846	0,004719	0,005219				
20	9,850(-1)	4,913(-4)	1,738(-4)	0,003344	0,006041	0,007794	0,00820			
25	9,813(-1)	5,592(-4)	2,406(-4)	0,003597	0,006794	0,009369	0,01102	0,01135		
30	9,776(-1)	6,132(-4)	3,075(-4)	0,003674	0,007130	0,010210	0,01268	0,01451	0,01451	
35	9,739(-1)	6,560(-4)	3,726(-4)	0,003626	0,007167	0,010510	0,01348	0,01736	0,01757	
40	9,703(-1)	6,898(-4)	4,341(-4)	0,003494	0,006996	0,01043	0,01367	0,01887	0,02048	
45	9,668(-1)	5,678(-4)	4,885(-4)	0,003305	0,006684	0,01008	0,01342	0,01940	0,02317	
50	9,633(-1)	4,674(-4)	5,128(-4)		0,006283	0,009567	0,01288	0,01923	0,02564	
55				0,002889		0,008945	0,01215	0,01858	0,02779	
60					0,005439		0,01131	0,01762	0,02853	
65				0,002421		0,007678		0,01647	0,02825	
70					0,004528		0,009635	0,01521	0,02728	
75				0,001971		0,006356		0,01392	0,02586	
80					0,003669		0,007935	0,01264	0,02415	
85				0,001571		0,005129		0,01140	0,02231	
90					0,002914		0,00638	0,01023	0,02041	
95				0,001232		0,004061		0,009133		
100					0,002280		0,005038	0,008118	0,01691	

TABELLE 7 Nuklidansbeuten bei Bestrahlung von reinem Cf-252 im Fluß $2 \cdot 10^{13}$ $N_{Fh}/cm^2 \cdot sec$

Relative Nuklidmenge während der Bestrahlung

Veränderung der relativen Es-253-Zerfallsrate (bez. auf die Cf-252-Zerfallsrate vor der Bestrahlung) des im Reaktor erzeugten Nuklidgemisches nach Bestrahlungsende

Tage	Cf-252	Cf-253	Es-253	Es-253/Cf-252						
5	9960(-1)	4091(-4)	3911(-5)	0,001845						
10	9919(-1)	7254(-4)	1360(-4)	0,004969	0,006413					
15	9879(-1)	9697(-4)	2667(-4)	0,007004	0,01146	0,01258				
20	9839(-1)	1158(-3)	4144(-4)	0,008225	0,01466	0,01871	0,01955			
25	9799(-1)	1303(-3)	5676(-4)	0,008847	0,01648	0,02245	0,02616	0,02677		
30	9760(-1)	1413(-3)	7186(-4)	0,009036	0,01729	0,02443	0,03003	0,03389	0,03389	
35	9720(-1)	1498(-3)	8623(-4)	0,008919	0,01737	0,02514	0,03190	0,04040	0,04067	
40	9681(-1)	1562(-3)	9959(-4)	0,008592	0,01695	0,02494	0,03232	0,04381	0,04697	
45	9642(-1)	1610(-3)	1118(-3)	0,008128	0,01620	0,02411	0,03172	0,04498	0,05268	
50	9603(-1)	1646(-3)	1227(-3)		0,01522	0,02287	0,03043	0,04455	0,05520	
55				0,007105		0,02138	0,02870	0,04303	0,05544	
60					0,01318		0,02670	0,04078	0,05407	
65				0,005954		0,01835		0,03810	0,05163	
70					0,01097		0,02275	0,03519	0,04852	
75				0,004846		0,01519			0,04502	
80					0,008887		0,01873	0,02961	0,04134	
85				0,003863		0,01225				
90					0,007059		0,01506	0,02418	0,03448	
95				0,003030		0,009703				
100					0,005522		0,01189	0,01932	0,02797	

TABELLE 8 Nuklidansbeuten bei Bestrahlung von reinem Cf-252 im Fluß $5 \cdot 10^{13}$ Nth/cm²·sec

Relative Nuklidmenge während der Bestrahlung

Veränderung der relativen Es-253-Zerfallsrate (bez. auf die Cf-252-Zerfallsrate vor der Bestrahlung) des im Reaktor erzeugten Nuklidgemisches nach Bestrahlungsende

Tage	Cf-252	Cf-253	Es-253	Es-253/Cf-252						
5	9955(-1)	7959(-4)	7658(-5)	<u>0,003612</u>						
10	9910(-1)	1377(-3)	2610(-4)	0,009687	<u>0,01231</u>					
15	9865(-1)	1799(-3)	5024(-4)	0,01364	0,02187	<u>0,02369</u>				
20	9821(-1)	2106(-3)	7670(-4)	0,01602	0,02792	0,03501	<u>0,03618</u>			
25	9777(-1)	2328(-3)	1033(-3)	0,01723	0,03135	0,04191	0,04811	<u>0,04874</u>		
30	9733(-1)	2487(-3)	1288(-3)	0,01759	0,03287	0,04555	0,05507	0,06077	<u>0,06077</u>	
35	9689(-1)	2600(-3)	1524(-3)	0,01736	0,03303	0,04683	0,05840	0,07204	0,07189	
40	9645(-1)	2680(-3)	1737(-3)	0,01672	0,03222	0,04643	0,05910	0,07790	0,08194	
45	9602(-1)	2735(-3)	1926(-3)	0,01582	0,03078	0,04487	0,05796	0,07982	0,09153	
50	9558(-1)	2772(-3)	2092(-3)		0,02893	0,04255	0,05558	0,07896	0,09568	
55				0,01383		0,03977	0,05239	0,07619	0,09592	
60					0,02503		0,04873	0,07216	0,09345	
65				0,01159		0,03412		0,06738	0,08916	
70					0,02083		0,04149	0,06220	0,08373	
75				0,009431		0,02823			0,07764	
80					0,01688		0,03415	0,05231	0,07128	
85				0,007516		0,02277				
90					0,01340		0,02744	0,04269	0,05900	
95				0,005896		0,01803				
100					0,01049		0,02166	0,03409m	0,04816	

TABELLE 9 Nuklidausbeuten bei Bestrahlung von reinem Cf-252 im Flug $1 \cdot 10^{14} \text{ N}_{\text{th}}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$

Relative Nuklidmenge während der Bestrahlung

Veränderung der relativen Es-253-Zerfallsrate (bez. auf die Cf-252-Zerfallsrate vor der Bestrahlung) des im Reaktor erzeugten Nuklidgemisches nach Bestrahlungsende

Tage	Cf-252	Cf-253	Es-253	Es-253/Cf-252						
5	9,946(-1)	1,508(-3)	1,469(-4)	0,00693						
10	9,892(-1)	2,486(-3)	4,817(-4)	0,01842	0,02272					
15	9,838(-1)	3,119(-3)	8,948(-4)	0,02590	0,03991	0,04221				
20	9,785(-1)	3,525(-3)	1,323(-3)	0,03039	0,05077	0,06164	0,06239			
25	9,731(-1)	3,782(-3)	1,731(-3)	0,03267	0,05691	0,07345	0,08207	0,08162		
30	9,679(-1)	3,943(-3)	2,101(-3)	0,03336	0,05962	0,07964	0,09349	0,09907	0,09907	
35	9,626(-1)	4,040(-3)	2,426(-3)	0,03292	0,05986	0,08175	0,09885	0,1165	0,1144	
40	9,574(-1)	4,096(-3)	2,705(-3)	0,03170	0,05837	0,08096	0,09985	0,1255	0,1276	
45	9,522(-1)	4,124(-3)	2,942(-3)	0,02999	0,05574	0,07819	0,09780	0,1282	0,1419	
50	9,470(-1)	4,135(-3)	3,138(-3)		0,05237	0,0411	0,09368	0,1266	0,1479	
55				0,02621		0,06923	0,08824	0,1220	0,1480	
60					0,04530		0,08203	0,1154	0,1440	
65				0,02196		0,05935		0,1077	0,1373	
70					0,03769		0,06977	0,09933	0,1288	
75				0,01787		0,04908			0,1194	
80					0,03053		0,05739	0,08344	0,1096	
85				0,01424		0,03958				
90					0,02424		0,04610	0,06805	0,09122	
95				0,01117		0,03132				
100					0,01896		0,03638	0,05431	0,07392	

TABELLE 10 Nuklidausbeuten bei Bestrahlung von reinem Cf-252 im Fluß $2 \cdot 10^{14} \text{ N}_{\text{th}} / \text{cm}^2 \cdot \text{sec}$

Relative Nuklidmenge während der Bestrahlung

Veränderung der relativen Es-253-Zerfallsrate (bez. auf die Cf-252-Zerfallsrate vor der Bestrahlung) des im Reaktor erzeugten Nuklidgemisches nach Bestrahlungsende

Tage	Cf-252	Cf-253	Es-253	Es-253/Cf-252						
5	9,918(-1)	3,223(-3)	3,250(-4)	<u>0,01533</u>						
10	9,837(-1)	4,692(-3)	9,591(-4)	0,03982	<u>0,04524</u>					
15	9,756(-1)	5,348(-3)	1,627(-3)	0,05574	0,07732	<u>0,07675</u>				
20	9,676(-1)	5,626(-3)	2,225(-3)	0,06527	0,09749	0,1094	<u>0,1050</u>			
25	9,597(-1)	5,729(-3)	2,724(-3)	0,07010	0,1088	0,1291	0,1355			
30	9,518(-1)	5,752(-3)	3,124(-3)	0,07153	0,1137	0,1392	0,1531	<u>0,1474</u>		
35	9,440(-1)	5,737(-3)	3,438(-3)	0,07055	0,1140	0,1424	0,1610	0,1724	<u>0,1621</u>	
40	9,363(-1)	5,705(-3)	3,679(-3)	0,06792	0,1110	0,1407	0,1621	0,1850	0,1735	
45	9,286(-1)	5,665(-3)	3,861(-3)	0,06423	0,1059	0,1356	0,1584	0,1887	0,1941	
50	9,210(-1)	5,622(-3)	3,997(-3)		0,09943	0,1284	0,1515	0,1861	0,2030	
55				0,05612		0,1198	0,1425	0,1791	0,2036	
60					0,08592		0,1323	0,1694	0,1985	
65				0,04700		0,1026		0,1579	0,1894	
70					0,07144		0,1124	0,1456	0,1779	
75				0,03825		0,08473			0,1650	
80					0,05783		0,09232	0,1222	0,1515	
85				0,03048		0,06827				
90					0,0459		0,07409	0,09964	0,1263	
95				0,02391		0,0540				
100					0,03589		0,05842	0,07949	0,1024	

TABELLE 11 Nuklidausbeuten bei Bestrahlung von reinem Cf-252 im Fluss $5 \cdot 10^{14}$ N_{th}/cm²·sec