

**EUR 4329 d**

ASSOZIATION

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM/  
BROWN BOVERI/KRUPP REAKTORBAU GmbH - BBK/  
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH DES LANDES  
NORDRHEIN-WESTFALEN e.V. - KFA

**ALPHA-SPEKTROMETRISCHE  
ISOTOPENHÄUFIGKEITSANALYSE  
DES URANS MIT HALBLEITERDETEKTOREN**

von

W. LITZOW und E. MERZ

1969



**THTR 90**

Bericht abgefaßt bei KFA  
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V.  
Deutschland

Assoziation Nr. 003-63-1 RGAD

## HINWEIS

Das vorliegende Dokument ist im Rahmen des Forschungsprogramms der Kommission der Europäischen Gemeinschaften ausgearbeitet worden.

Es wird darauf hingewiesen, daß die Kommission der Europäischen Gemeinschaften, ihre Vertragspartner und die in deren Namen handelnden Personen :

keine Gewähr dafür übernehmen, daß die in diesem Dokument enthaltenen Informationen richtig und vollständig sind, oder daß die Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden und Verfahren nicht gegen gewerbliche Schutzrechte verstößt;

keine Haftung für die Schäden übernehmen, die infolge der Verwendung der in diesem Dokument enthaltenen Informationen oder der in diesem Dokument beschriebenen technischen Anordnungen, Methoden oder Verfahren entstehen könnten.

Dieser Bericht wird in den auf der vierten Umschlagseite genannten Vertriebsstellen

zum Preise von DM 3,70	FF 5,60	FB 50,—	Lit. 620	Fl. 3,60
------------------------	---------	---------	----------	----------

verkauft.

**Es wird gebeten, bei Bestellungen die EUR-Nummer und den Titel anzugeben, die auf dem Umschlag jedes Berichts aufgeführt sind.**

Gedruckt von Van Muysewinkel  
Brüssel, Dezember 1969

Das vorliegende Dokument wurde an Hand des besten Abdruckes vervielfältigt, der zur Verfügung stand.

## EUR 4329 d

ALPHA-SPEKTROMETRISCHE ISOTOPENHAUFIGKEITSANALYSE DES URANS MIT HALBLEITERDETEKTOREN, von W. LITZOW und E. MERZ

Assoziation: Europäische Atomgemeinschaft — EURATOM/  
Brown Boveri/Krupp Reaktorbau GmbH — BBK/  
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. — KFA

THTR 90

Bericht abgefaßt bei KFA — Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. (Deutschland)

Assoziation Nr. 003-63-1 RGAD

Luxembourg, Dezember 1969 — 24 Seiten — 13 Abbildungen — FB 50

Die Kerntechnik verlangt sehr oft die genaue Kenntnis der Zusammensetzung und Anreicherung der Uranisotope, vor allem der spaltbaren Isotope  $^{235}\text{U}$  und  $^{238}\text{U}$ . Auf Grund ihrer Alpha-Instabilität läßt sich die Spektrometrie mittels Halbleiterdetektoren erfolgreich für eine quantitative Bestimmung anwenden.

## EUR 4329 d

ALPHA-SPECTROMETRIC ISOTOPE ABUNDANCE ANALYSIS OF URANIUM USING SEMI-CONDUCTOR DETECTORS, by W. LITZOW and E. MERZ

Association: European Atomic Energy Community — EURATOM/  
Brown Boveri/Krupp Reaktorbau GmbH — BBK/  
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. — KFA

THTR 90

Report prepared at KFA — Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. (Germany)

Association No. 003-63-1 RGAD

Luxembourg, December 1969 — 24 pages — 13 figures — FB 50

Nuclear technology very often requires precise knowledge of the composition and enrichment of uranium isotopes, in particular the fissile isotopes  $\text{U}^{235}$  and  $\text{U}^{238}$ . Because of its alpha-instability, spectrometry using semi-conductor detectors can be successfully used for quantitative determination.

## EUR 4329 d

ALPHA-SPECTROMETRIC ISOTOPE ABUNDANCE ANALYSIS OF URANIUM USING SEMI-CONDUCTOR DETECTORS, by W. LITZOW and E. MERZ

Association: European Atomic Energy Community — EURATOM/  
Brown Boveri/Krupp Reaktorbau GmbH — BBK/  
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. — KFA

THTR 90

Report prepared at KFA — Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. (Germany)

Association No. 003-63-1 RGAD

Luxembourg, December 1969 — 24 pages — 13 figures — FB 50

Nuclear technology very often requires precise knowledge of the composition and enrichment of uranium isotopes, in particular the fissile isotopes  $\text{U}^{235}$  and  $\text{U}^{238}$ . Because of its alpha-instability, spectrometry using semi-conductor detectors can be successfully used for quantitative determination.

## EUR 4329 d

ALPHA-SPECTROMETRIC ISOTOPE ABUNDANCE ANALYSIS OF URANIUM USING SEMI-CONDUCTOR DETECTORS, by W. LITZOW and E. MERZ

Association: European Atomic Energy Community — EURATOM/  
Brown Boveri/Krupp Reaktorbau GmbH — BBK/  
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. — KFA

THTR 90

Report prepared at KFA — Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V. (Germany)

Association No. 003-63-1 RGAD

Luxembourg, December 1969 — 24 pages — 13 figures — FB 50

Nuclear technology very often requires precise knowledge of the composition and enrichment of uranium isotopes, in particular the fissile isotopes  $\text{U}^{235}$  and  $\text{U}^{238}$ . Because of its alpha-instability, spectrometry using semi-conductor detectors can be successfully used for quantitative determination.

Die Genauigkeit solcher Häufigkeitsanalysen hängt außer von einem genügenden energetischen Auflösungsvermögen, wegen der überwiegend statistischen Fehlerquellen, vorwiegend von der Teilchen-Nachweiswahrscheinlichkeit der Methode ab. Ein besonderer Vorteil dieser spektrometrischen Methode, der die Auswertung wesentlich vereinfacht, ist die Tatsache, daß im gesamten Energiebereich von 4 bis 5,5 MeV die Halbwertsbreiten der einzelnen Alpha-Linien als konstant angesehen werden können.

Die Herstellung der Meßpräparate erfolgt durch elektrolytische Abscheidung des Urans auf Nickel-Kathoden aus einer organischen Elektrolytlösung, einer als „molecular plating“ bekannten Methode. Zur Aufnahme der Alpha-Spektren wurde ein Halbleiterdetektor mit 25 mm<sup>2</sup> Zählfläche und einer Energieauflösung von 17 keV Halbwertsbreite herangezogen. Mit der gesamten spektrometrischen Anordnung konnte eine maximale Energieauflösung von 19 keV erzielt werden.

Die optimalen Bedingungen für die Häufigkeitsanalyse des Urans setzen eine Energieauflösung von 25 keV und eine Teilchen-Nachweiswahrscheinlichkeit von 0,5 % fest. Nach einer Meßzeit von 72 h wurden die Anreicherungsgrade eines mit <sup>235</sup>U angereicherten Urangemisches mit  $\pm 10$  % Genauigkeit ermittelt. Steigerungen der Genauigkeit sind durch längere Meßzeiten und programmierte Rechenverfahren möglich.

The accuracy of these abundance analyses depends mainly on the particle detection probability of the method, and also on adequate energy resolution because of the predominantly statistical sources of error. A particular advantage of this spectrometric method, and one which considerably simplifies evaluation, is that the half-widths of the individual alpha-lines over the whole of the energy range from 4 to 5.5 MeV can be considered constant.

The measuring preparations are made by electrodeposition of the uranium from an organic electrolytic solution on nickel cathodes. This method is known as „molecular plating“. To plot the alpha-spectra, a semi-conductor detector with a counting surface of 25 mm<sup>2</sup> and an energy resolution of 17 keV half-width was employed. With the overall spectrometric device a maximum energy resolution of 19 keV was attained.

The optimum conditions for the abundance analysis of the uranium stipulate an energy resolution of 25 keV and a particle detection probability of 0.5 %. After a measuring time of 72 h the enrichment factor of a U<sup>235</sup>-enriched uranium mixture was ascertained to an accuracy of  $\pm 10$  %. Increased accuracy is possible with longer measuring times and programmed calculation.

The accuracy of these abundance analyses depends mainly on the particle detection probability of the method, and also on adequate energy resolution because of the predominantly statistical sources of error. A particular advantage of this spectrometric method, and one which considerably simplifies evaluation, is that the half-widths of the individual alpha-lines over the whole of the energy range from 4 to 5.5 MeV can be considered constant.

The measuring preparations are made by electrodeposition of the uranium from an organic electrolytic solution on nickel cathodes. This method is known as „molecular plating“. To plot the alpha-spectra, a semi-conductor detector with a counting surface of 25 mm<sup>2</sup> and an energy resolution of 17 keV half-width was employed. With the overall spectrometric device a maximum energy resolution of 19 keV was attained.

The optimum conditions for the abundance analysis of the uranium stipulate an energy resolution of 25 keV and a particle detection probability of 0.5 %. After a measuring time of 72 h the enrichment factor of a U<sup>235</sup>-enriched uranium mixture was ascertained to an accuracy of  $\pm 10$  %. Increased accuracy is possible with longer measuring times and programmed calculation.

The accuracy of these abundance analyses depends mainly on the particle detection probability of the method, and also on adequate energy resolution because of the predominantly statistical sources of error. A particular advantage of this spectrometric method, and one which considerably simplifies evaluation, is that the half-widths of the individual alpha-lines over the whole of the energy range from 4 to 5.5 MeV can be considered constant.

The measuring preparations are made by electrodeposition of the uranium from an organic electrolytic solution on nickel cathodes. This method is known as „molecular plating“. To plot the alpha-spectra, a semi-conductor detector with a counting surface of 25 mm<sup>2</sup> and an energy resolution of 17 keV half-width was employed. With the overall spectrometric device a maximum energy resolution of 19 keV was attained.

The optimum conditions for the abundance analysis of the uranium stipulate an energy resolution of 25 keV and a particle detection probability of 0.5 %. After a measuring time of 72 h the enrichment factor of a U<sup>235</sup>-enriched uranium mixture was ascertained to an accuracy of  $\pm 10$  %. Increased accuracy is possible with longer measuring times and programmed calculation.

**EUR 4329 d**

ASSOZIATION

EUROPÄISCHE ATOMGEMEINSCHAFT — EURATOM/  
BROWN BOVERI/KRUPP REAKTORBAU GmbH - BBK/  
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH DES LANDES  
NORDRHEIN-WESTFALEN e.V. - KFA

**ALPHA-SPEKTROMETRISCHE  
ISOTOPENHÄUFIGKEITSANALYSE  
DES URANS MIT HALBLEITERDETEKTOREN**

von

W. LITZOW und E. MERZ

1969



**THTR 90**

**Bericht abgefaßt bei KFA  
Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen e.V.  
Deutschland**

**Assoziation Nr. 003-63-1 RGAD**

## ZUSAMMENFASSUNG

Die Kerntechnik verlangt sehr oft die genaue Kenntnis der Zusammensetzung und Anreicherung der Uranisotope, vor allem der spaltbaren Isotope  $^{235}\text{U}$  und  $^{233}\text{U}$ . Auf Grund ihrer Alpha-Instabilität läßt sich die Spektrometrie mittels Halbleiterdetektoren erfolgreich für eine quantitative Bestimmung anwenden.

Die Genauigkeit solcher Häufigkeitsanalysen hängt außer von einem genügenden energetischen Auflösungsvermögen, wegen der überwiegend statistischen Fehlerquellen, vorwiegend von der Teilchen-Nachweiswahrscheinlichkeit der Methode ab. Ein besonderer Vorteil dieser spektrometrischen Methode, der die Auswertung wesentlich vereinfacht, ist die Tatsache, daß im gesamten Energiebereich von 4 bis 5,5 MeV die Halbwertsbreiten der einzelnen Alpha-Linien als konstant angesehen werden können.

Die Herstellung der Meßpräparate erfolgt durch elektrolytische Abscheidung des Urans auf Nickel-Kathoden aus einer organischen Elektrolytlösung, einer als „molecular plating“ bekannten Methode. Zur Aufnahme der Alpha-Spektren wurde ein Halbleiterdetektor mit 25 mm<sup>2</sup> Zählfläche und einer Energieauflösung von 17 keV Halbwertsbreite herangezogen. Mit der gesamten spektrometrischen Anordnung konnte eine maximale Energieauflösung von 19 keV erzielt werden.

Die optimalen Bedingungen für die Häufigkeitsanalyse des Urans setzen eine Energieauflösung von 25 keV und eine Teilchen-Nachweiswahrscheinlichkeit von 0,5 % fest. Nach einer Meßzeit von 72 h wurden die Anreicherungsgrade eines mit  $^{235}\text{U}$  angereicherten Urangemisches mit  $\pm 10\%$  Genauigkeit ermittelt. Steigerungen der Genauigkeit sind durch längere Meßzeiten und programmierte Rechenverfahren möglich.

## SCHLAGWÖRTE

ALPHA SPECTROMETERS  
ISOTOPE RATIO  
URANIUM ISOTOPES  
SEMICONDUCTOR COUNTERS  
URANIUM 235  
URANIUM 233  
DETERMINATION  
EFFICIENCY

# ALPHA-SPEKTROMETRISCHE ISOTOPENHÄUFIGKEITSANALYSE DES URANS MIT HALBLEITERDETEKTOREN\*)

## 1. Einleitung

In der Kerntechnik, insbesondere bei Isotopenanreicherungsverfahren und der Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe, ist die Kenntnis der Isotopenzusammensetzung des Urans, besonders aber ihrer Anreicherungsgrade von Bedeutung. Vor allem interessiert der Gehalt an den spaltbaren Isotopen  $^{235}\text{U}$  und  $^{233}\text{U}$ . Da die in diesem Zusammenhang wichtigen Uranisotope alpha-instabil sind, bietet die Alpha-Spektrometrie ein geeignetes Hilfsmittel zu ihrer quantitativen Bestimmung (1). Die Massenspektrometrie als das bekannteste und genaueste Verfahren für Isotopenhäufigkeitsanalysen scheidet für einen technischen Serienanalysen-Einsatz häufig wegen der hohen Anschaffungs- und Betriebskosten aus. Man ist deshalb an einfacheren Verfahren interessiert.

Der besondere Vorteil der hier beschriebenen Alpha-Spektrometrie mit Halbleiterdetektoren und linearem Vielkanalanalysator gegenüber anderen spektrometrischen Methoden liegt darin, daß in dem zu untersuchenden Energiebereich von 4 bis 5,5 MeV die Halbwertsbreiten  $\Delta E$  der einzelnen Verteilungskurven aufgrund experimenteller Untersuchungen als konstant betrachtet werden können, sie liegen zumindest unterhalb aller übriger Fehlerquellen.

Das energetische Auflösungsvermögen des anzuwendenden spektrometrischen Verfahrens muß mindestens 30 keV betragen, will man die beiden sich nur um 48 keV unterscheidenden Isotopen  $^{234}\text{U}$  und  $^{233}\text{U}$  noch gut voneinander trennen. Da die zur Registrierung von Alpha-Teilchen bislang dienenden Detektoren, wie Proportionalzähler, Szintillatoren und Impulsionskammern, jedoch nur eine maximale Energieauflösung von 80 keV erreichen, sind sie für eine vollständige Isotopenhäufigkeitsanalyse des Urans nicht geeignet. Eine Lösung bieten die in zunehmendem Maße technisch immer höher entwickelten Halbleiterdetektoren, die für Alpha-Teilchen (Si-Oberflächengrenzschichtzähler) eine Energieauflösung bis zu 15 keV gewährleisten, wobei natürlich eine geringere Nachweiswahrscheinlichkeit in Kauf genommen werden muß (2).

## 2. Theoretischer Teil

Die für die Kerntechnik wichtigen Uranisotope von  $^{232}\text{U}$  bis  $^{238}\text{U}$  sind mit Ausnahme von  $^{237}\text{U}$  alle alpha-instabil, weshalb sie aufgrund ihrer Alpha-Strahlung quantitativ gemessen werden können.

---

\*) Manuskript erhalten am 29. Juli 1969.

Bei diesem spektrometrischen Verfahren hat nun eine Erhöhung des energetischen Auflösungsvermögens die Erniedrigung der Nachweisempfindlichkeit zur Folge. Die Genauigkeit der Isotopenhäufigkeitsanalyse des Urans hängt nicht nur von der energetischen Auflösung ab, sondern ebenso von der registrierten Impulszahl. Deshalb muß ein Kompromiß zwischen Energieauflösung und Nachweiswahrscheinlichkeit der Methode getroffen werden, zumal die spezifischen Aktivitäten der einzelnen Uranisotope sich bis zu sieben Zehnerpotenzen unterscheiden können. Aufgrund der überwiegend statistischen Fehlerquellen hängt die Genauigkeit dieser Methode (genügend hohe Energieauflösung vorausgesetzt) im wesentlichen von der Anzahl registrierter Impulse ab. So werden stets die intensivitätsschwächsten Isotope die Genauigkeit der Häufigkeitsanalyse bestimmen.

Die Berechnung des Anreicherungsgrades  $c_i$  des Uranisotops  $i$  erfolgt nach der einfachen Beziehung :

$$c_i = \frac{\frac{\delta_{z_{i\lambda}} \cdot T_i}{P_{i\lambda}}}{\sum_i \frac{\delta_{z_{i\lambda}} \cdot T_i}{P_{i\lambda}}}$$

$T_i$  = Halbwertszeit des Uranisotops  $i$

$P_{i\lambda}$  = relative Häufigkeit des Energieanteils  $\lambda$  des Isotops  $i$

$\delta_{z_{i\lambda}}$  = ermittelte Gesamtimpulszahl (Fläche des Peaks  $\lambda$  des Isotops  $i$ )

$$\delta_{z_{i\lambda}} = \int_{-K'}^{+K'} z_{i\lambda}(K) \cdot dK$$

Das Spektrum wird in Einheiten des Energiekanals ( $K$ ) des Impulshöhenanalysators registriert und ausgewertet.

Obige Beziehung liefert nur dann genaue Werte für die Koeffizienten  $c_i$ , wenn :

1. die Meßzeiten so eingehalten werden, daß ihr Verhältnis zu den Halbwertszeiten der Uranisotope  $\leq 10^{-3}$  ist. Unter Berücksichtigung der niedrigsten Halbwertszeit von 72 a ( $^{232}\text{U}$ ) bedeutet dies eine Meßzeit von maximal 30 Tagen,
2. die Integrationsbereiche für alle zu untersuchenden Peaks in dem registrierten Alpha-Spektrum exakt gleich und konstant sind und sie



ferner, wegen des statistischen Fehlers, so groß wie möglich gewählt werden (dies ist natürlich durch die energetische Auflösung der Anordnung begrenzt).

Der relative Gesamtfehler, der bei der Bestimmung der Größen  $c_i$  gemacht wird, ist gegeben durch :

$$\sigma_i = \pm \sqrt{\frac{1}{\delta z_{i\lambda}} + \sum \frac{1}{\delta z_{i\lambda}}}$$

Das energetische Auflösungsvermögen  $\Delta E$  in keV (konstante Halbwertsbreite) der spektrometrischen Anordnung aus Präparat, Detektor und Elektronik wird durch eine Reihe von Faktoren bestimmt, deren Beiträge  $w$  (keV) zur Linienverbreiterung sich geometrisch addieren zu (3) :

$$\Delta E = \pm \sqrt{\sum w^2}$$

Die zu untersuchende radioaktive Substanz muß in sehr dünner und homogener Schicht vorliegen, um Energieverluste durch Selbstabsorption und Adsorption an ihrer Auflagefläche so weit wie möglich herabzusetzen. Sind die optimalen Bedingungen hierfür gefunden worden, dann wird ein Beitrag zur Linienverbreiterung durch die Geometrie Präparat-Detektor geliefert, welche einmal durch den Abstand Präparat-Detektor und zum anderen durch das Verhältnis von Präparatfläche zu Zählfläche des Detektors festgelegt ist. Die beiden folgenden Abbildungen 1 und 2 zeigen diese Zusammenhänge. Die im experimentellen Teil beschriebenen Messungen wurden bei einem Abstand Präparat-Detektor von  $a = 4$  mm und einem Blendendurchmesser des Präparates von  $d = 8$  mm durchgeführt. Diese Bedingungen liefern eine optimale Zählzählbeute bei annehmbarer Energieauflösung.

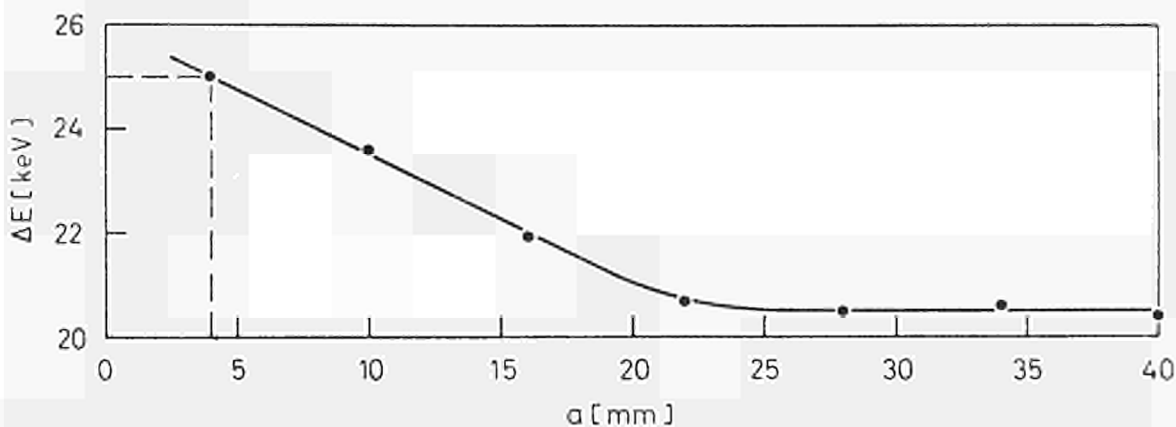
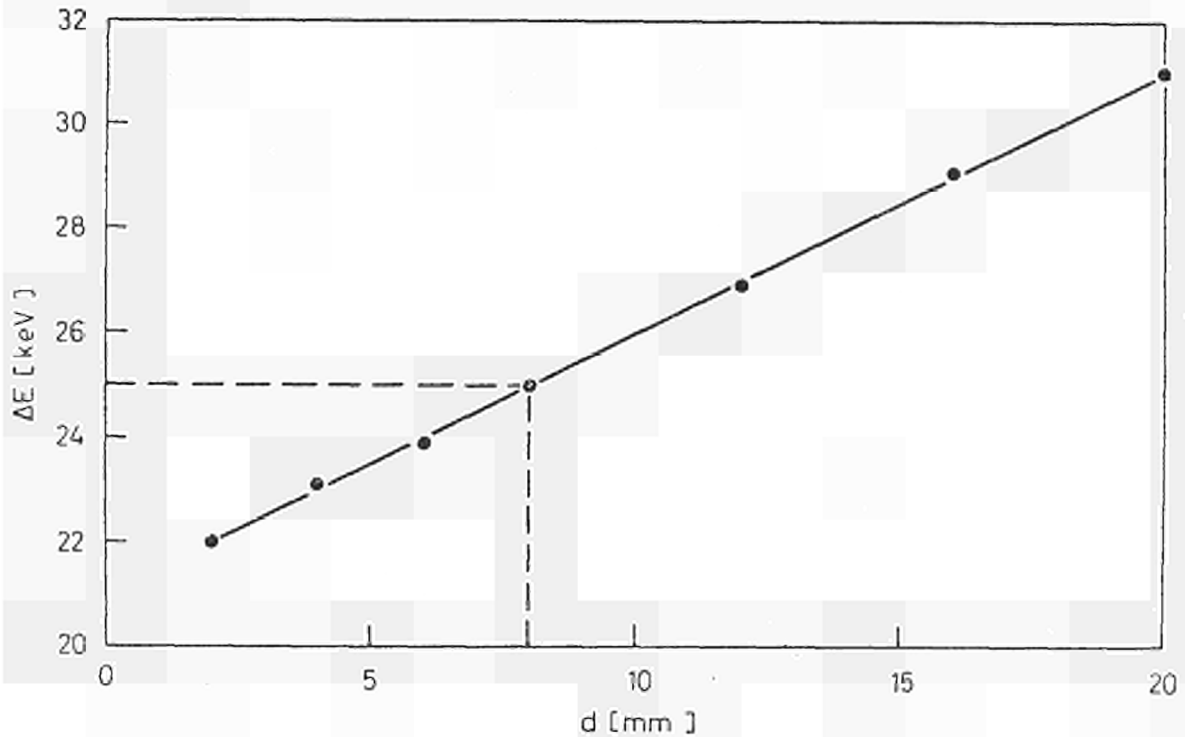


Abb. 1 : Abhängigkeit des Energieauflösungsvermögens  $\Delta E$  vom Abstand  $a$  Präparat-Detektor bei einem Blendendurchmesser des Präparates von  $d = 8$  mm



**Abb. 2 :** Abhängigkeit des Energieauflösungsvermögens  $\Delta E$  vom Blendendurchmesser  $d$  des Präparates bei einem Abstand Präparat-Detektor von  $a = 4$  mm

Die durch die Beschaffenheit des Präparates und die Geometrie Präparat-Detektor verursachte Linienverbreiterungen bewirken die Unsymmetrie der Verteilungskurven nach der niederenergetischen Seite.

### 3. Experimenteller Teil

#### 3.1. Herstellung der Meßpräparate

Nur dünne und gleichmäßige Schichten gewährleisten ein gutes energetisches Auflösungsvermögen radioaktiver Alpha-Präparate. Deshalb wurde zu ihrer Herstellung die elektrolytische Abscheidung auf glatte Metallflächen (Chrom, Nickel) benutzt. Diese Methode wurde nach einigen Vorversuchen aus praktischen Gründen der Vakuumaufdampfung vorgezogen, da vor allem mit sehr geringen und meßbaren Konzentrationen gearbeitet werden konnte, wodurch auch Kontaminationsprobleme nicht berücksichtigt zu werden brauchten. In bezug auf die Güte der hergestellten Präparate bietet außerdem die Vakuumaufdampfung gegenüber der elektrolytischen Abscheidung keinerlei Vorteile (1). Das zu untersuchende Uran, welches als Gemisch

verschiedener Isotope in unterschiedlichen Anreicherungsgraden vorliegt, wird vorteilhafterweise als Uranylnitrat  $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$  verwendet. Die wäßrige Lösung dieses Salzes mit einem  $p_H^-$  Wert von  $4,0 \pm 0,5$  ist der Ausgangsstoff für alle elektrolytischen Verfahren.

Zwei verschiedene elektrolytische Methoden wurden untersucht :

1. eine "anorganische", deren Elektrolyt außer Uranylnitrat vorwiegend Ammoniumcarbonat als Ionenträger enthält (4),
2. eine "organische", deren Elektrolyt neben geringsten Volumina Uranylnitrat ausschließlich aus Isopropanol besteht (5).

Durch Variation von Konzentration und Temperatur der Elektrolyten sowie der angelegten elektrischen Spannung zwischen den Elektroden und der Depositionsdauer, konnten die Bedingungen gefunden werden, die zu einem optimalen Auflösungsvermögen der Präparate führten.

Die zur elektrolytischen Abscheidung benutzte Apparatur ist in Abb. 3 schematisch dargestellt. Das Uran wird kathodisch abgeschieden.

Die Anode besteht aus einer, mit einem Rührmotor konstanter Drehzahl betriebenen, Platinspirale von 40 mm Durchmesser. Als geeignete Drehzahl hat sich 350 U/min erwiesen. Die Gleichmäßigkeit des elektrolytischen Niederschlages wird in entscheidender Weise durch die Gestalt und Drehzahl der Anode beeinflusst.

Die Kathode, auf welcher sich das Uran abscheidet, wird von den verchromten bzw. vernickelten Messingplättchen (45 mm Durchmesser und 0,5 mm Dicke) gebildet. Ein Teflonring, mit dem sie eingespannt werden, legt eine Kathodenfläche von 40 mm Durchmesser fest. Der Abstand zwischen Kathode und Anode beträgt 15 mm. Größere Abstände sind mit einem höheren Widerstandswert bzw. einer kleineren Stromstärke verbunden, wodurch die Abscheidungsgeschwindigkeit verkleinert wird. Auch ist die Homogenität des elektrischen Feldes bei kleineren Abständen besser erfüllt. Um reproduzierbare Werte für die Depositionen zu erhalten, müssen außer der gleichen Zusammensetzung des Elektrolyten, Temperatur, Spannung, Urankonzentration und Abscheidungsdauer konstant gehalten werden.

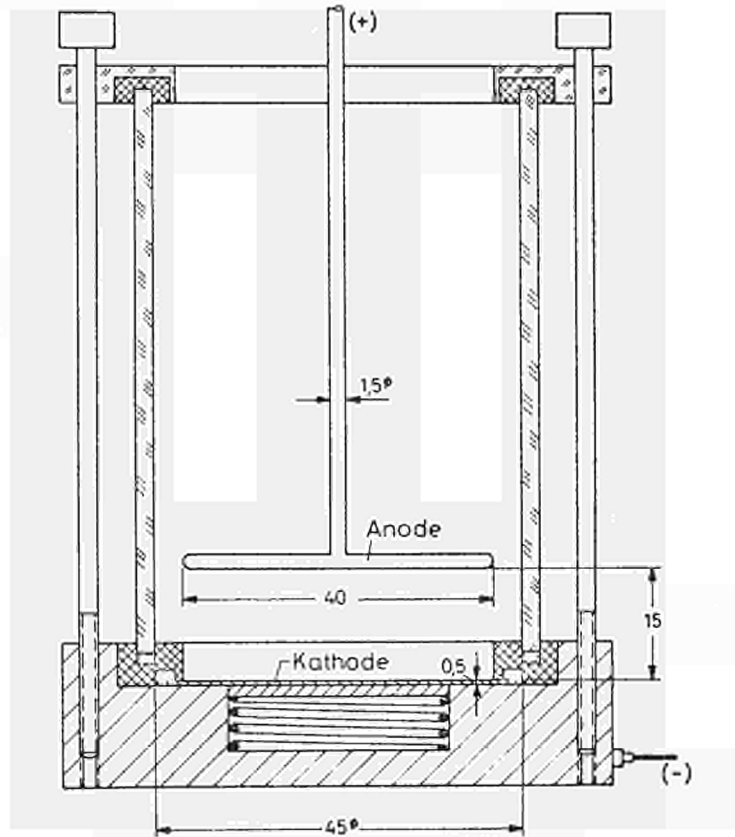


Abb. 3 : Elektrolytgefäß zur Uranabscheidung

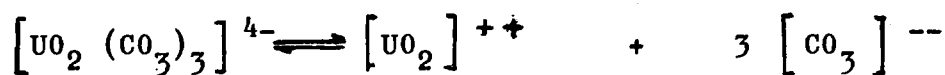
Die Verwendung von Chromkathoden hat sich gegenüber Nickelkathoden als wenig vorteilhaft erwiesen. Infolge leichter kathodischer Oxydation erfolgte eine merkliche Passivierung der Chromkathode, welche in den meisten Fällen fehlerhafte und ungleichmäßige Uranabscheidungen verursachte.

Die Versuchsbedingungen für eine optimale elektrolytische Uranabscheidung sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Der "anorganische" Elektrolyt liefert einen Niederschlag auf der Nickelskathode aus Uranoxidhydrat verschiedener Zusammensetzung :



Der sich in der Lösung bildende Komplex :



sorgt für eine über längere Zeit konstante  $UO_2^{++}$ -Konzentration, wodurch eine gleichmäßige Ausfällung erzielt wird.

	Anorganischer Elektrolyt	Organischer Elektrolyt
Zusammensetzung der Elektrolytlösung	20 ml $2 \cdot 10^{-3}$ molare Uranylнитratlösung (Genauigkeit $\pm 0,3 \%$ ) 20 ml 0,5 molare Ammoniumcarbonatlösung 10 ml 96 %-iges Äthanol	0,1 ml $8 \cdot 10^{-2}$ molare Uranylнитratlösung (Genauigkeit $\pm 1,3 \%$ ) 50 ml 97 %-iges Isopropanol
Uran-Konzentration	0,12 mg/ml, entspricht einem Urangehalt von 2,4 mg in 50 ml Lösung	4,7 mg/ml, entspricht einem Urangehalt von 0,5 mg in 50 ml Lösung
Temperatur der Elektrolytlösung	50°C	20°C
elektrische Gleichspannung	2 Volt bei Ni-Kathode 4 Volt bei Cr-Kathode	300 Volt bei Ni-Kathode
Abscheidungs-dauer	30 Minuten	15 Minuten

Tabelle 1 : Versuchsbedingungen zur elektrolytischen Uranabscheidung

Bei der als "molecular plating" bekannten elektrolytischen Methode (der Ladungstransport erfolgt an Molekülgruppen), unter Verwendung eines organischen Elektrolyten, ist eine quantitative Abscheidung innerhalb sehr kurzer Zeit möglich. Der gebildete Niederschlag ist äußerst gleichmäßig und der Ausfall schadhafter Meßproben kann mit  $< 1 \%$  angegeben werden. Demzufolge ist dieser Methode der Vorzug zu geben.

Die Abb. 4 und 5 zeigen die Abhängigkeit der Uranabscheidung für einen anorganischen Elektrolyten und Nickel-Kathoden von der elektrischen Gleichspannung und der Zeit.

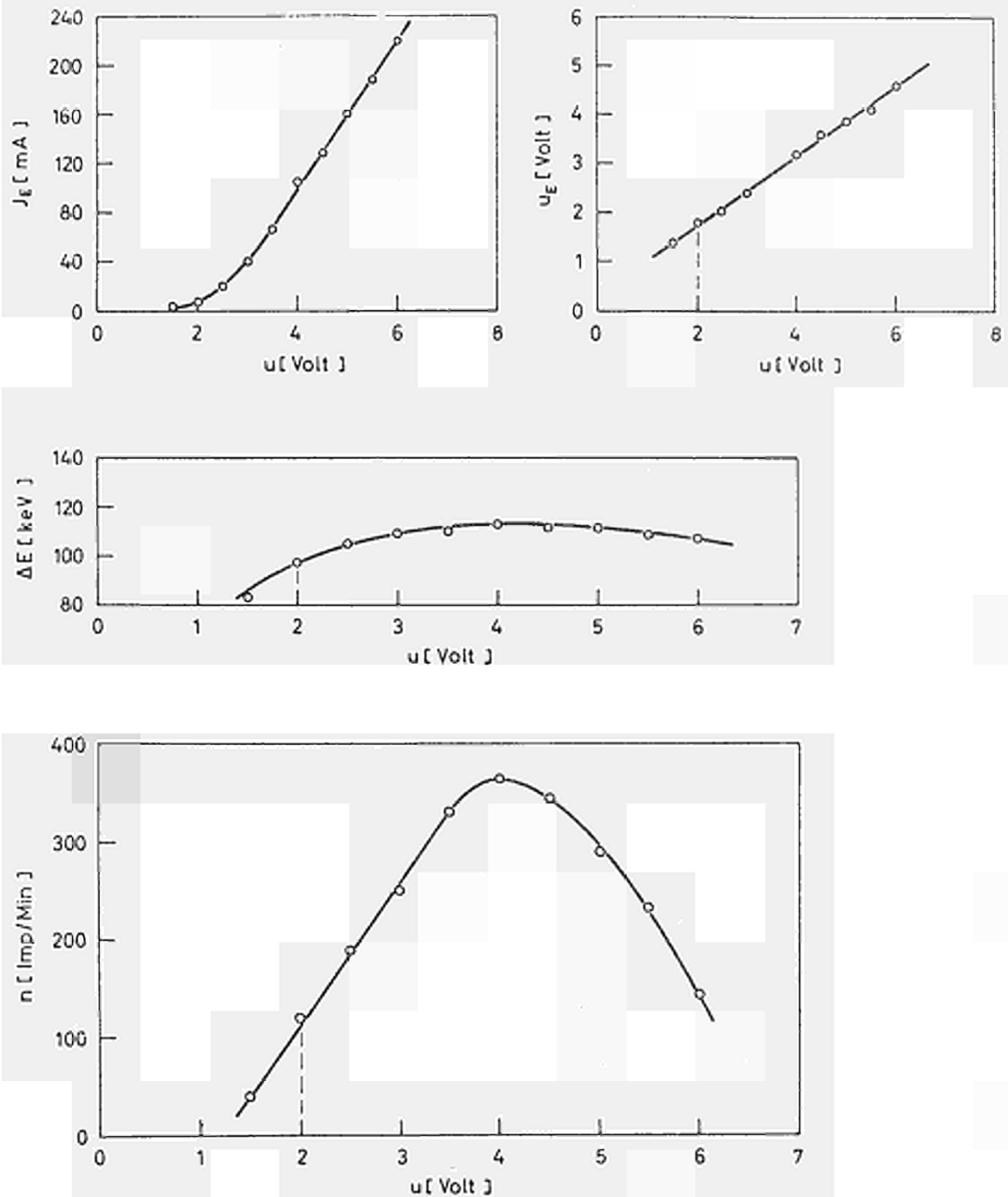


Abb. 4 : Spannungs-Abhängigkeit

Ni-Kathode

Temperatur : 50°C

Konzentration :  $2 \cdot 10^{-3}$  Mol/Liter

Zeit : 30 Minuten

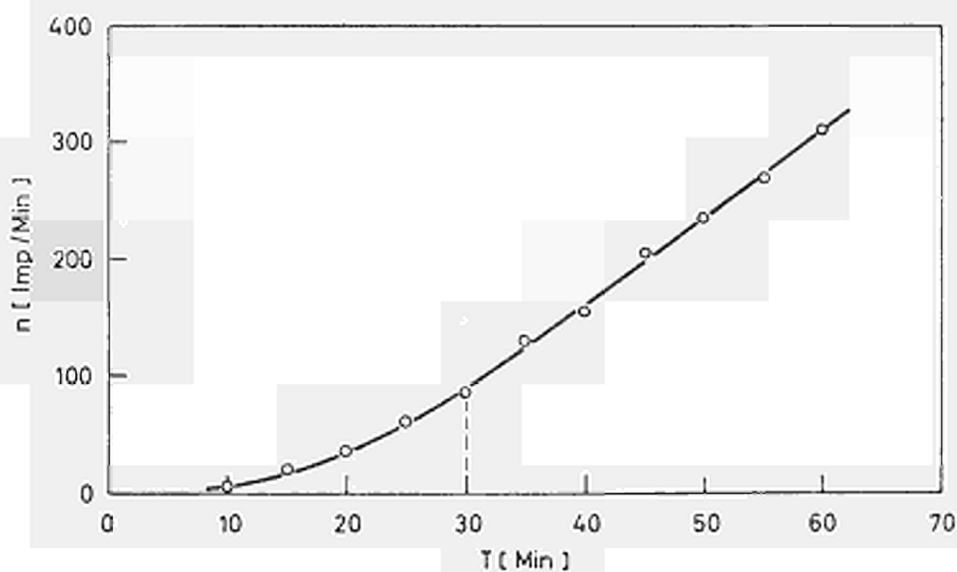
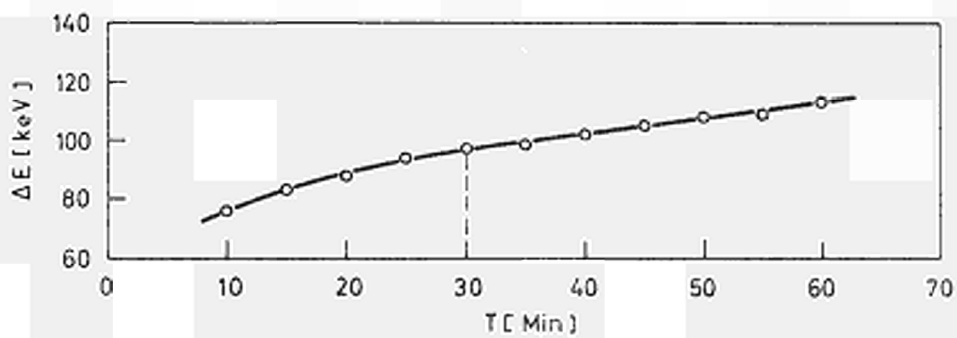


Abb. 5 : Zeit-Abhängigkeit Ni-Kathode  
Temperatur : 50°C  
Konzentration :  $2 \cdot 10^{-3}$  Mol/Liter  
Spannung : 2 Volt

Die Abhängigkeit der Uranabscheidung für einen organischen Elektrolyten ("molecular plating") auf Nickel-Kathoden von der angelegten elektrischen Gleichspannung und der Zeit sind in den Abb. 6 und 7 graphisch dargestellt.

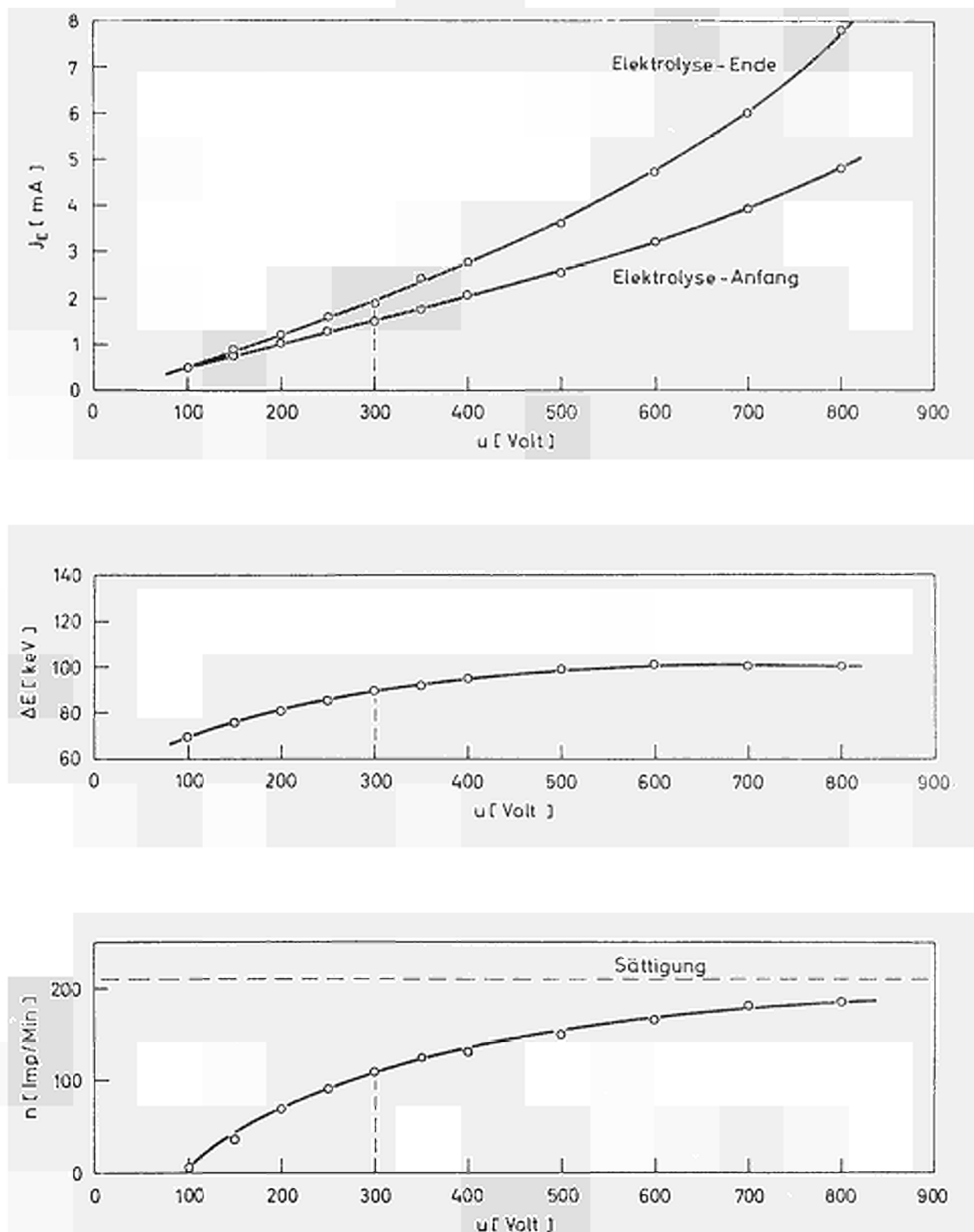


Abb. 6 : Molecular-Plating

Spannungs-Abhängigkeit

Ni-Kathode

Temperatur :  $20^{\circ}\text{C}$

Konzentration :  $8 \cdot 10^{-2}$  Mol/Liter

Zeit : 15 Minuten



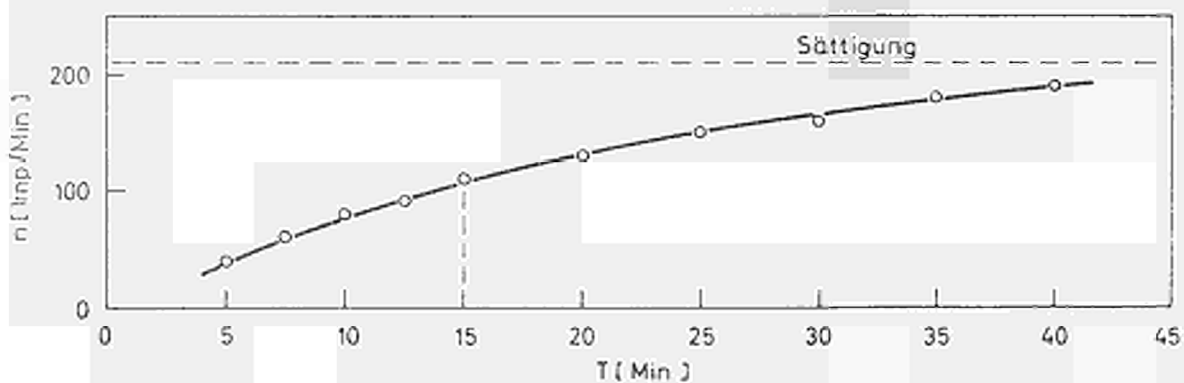
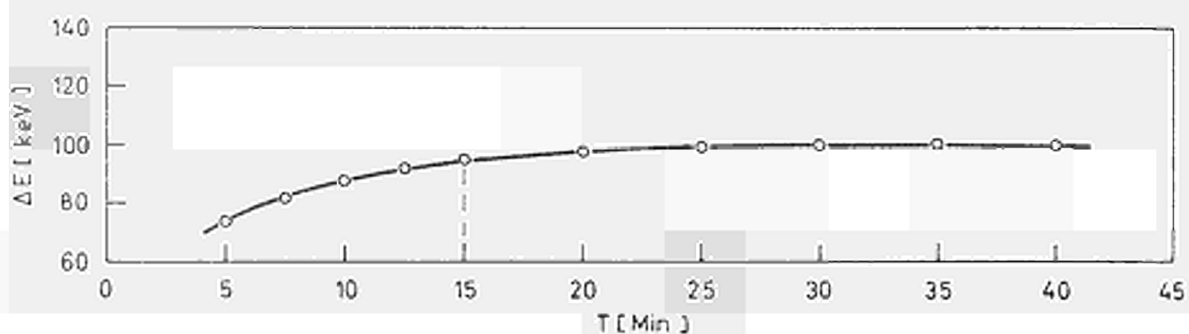
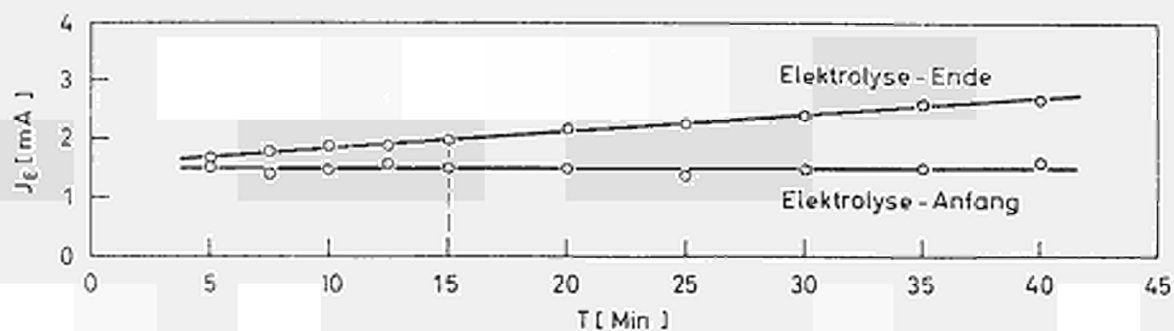


Abb. 7 : Molecular-Plating

Zeit-Abhängigkeit

Temperatur :  $20^{\circ}\text{C}$

Konzentration :  $8 \cdot 10^{-2}$  Mol/Liter

Spannung : 300 Volt

Ni-Kathode

### 3.2. Apparative Ausstattung

Zu Beginn der Untersuchungen stand nur eine Alpha-Impulsionskammer (Frisch-Gitter-Kammer der Fa. Tracerlab, Typ RLD-1) mit einem Auflösungsvermögen von maximal 80-90 keV, je nach dem verwendeten Gasgemisch zur Verfügung. Mit diesem Gerät konnten Erfahrungen über die Abhängigkeit der Aktivität und Energieauflösung der hergestellten Präparate von den verschiedenen Elektrolyse-Bedingungen gesammelt werden. Die Ansprechwahrscheinlichkeit der Alpha-Kammer betrug 38,5 %. Später wurden nur noch Halbleiterdetektoren eingesetzt.

Die grundsätzliche Überlegenheit der Halbleiterdetektoren gegenüber Ionisationskammern, Proportionalzählern und Szintillatoren ergibt sich aus der Tatsache, daß die im Mittel zur Erzeugung von Ladungsträgern aufzuwendende Energie in Festkörpern erheblich kleiner ist. Man erhält bei vorgegebener Energie eine wesentlich höhere Ausbeute an Ladungsträgern und dadurch, wegen der damit verbundenen kleineren statistischen Schwankung, auch ein besseres Energieauflösungsvermögen.

Zur Aufnahme der Alpha-Spektren wurden zwei verschiedene Halbleiterdetektoren (Si-Oberflächengrenzschichtzähler) eingesetzt :

a : mit 300 mm<sup>2</sup> Zählfläche und einer maximalen Energieauflösung von 31 keV,

b : mit 25 mm<sup>2</sup> Zählfläche und einer maximalen Energieauflösung von 17 keV,

jeweils gemessen bei einer Alpha-Linie von 5,5 MeV (<sup>241</sup>Am).

Der selbstangefertigte Vorverstärker für den Halbleiterdetektor lieferte eine Energiebreite von 8 keV und die gesamte durch den Halbleiterdetektor (25 mm<sup>2</sup> Zählfläche, 17 keV Auflösung) hervorgerufene Linienverbreiterung beträgt 9,7 keV.

Die durch die Kanalbreite des verwendeten Vielkanalanalysators (Victoreen-SCIPP 400) bedingte Ungenauigkeit des Energieauflösungsvermögens ergibt sich bei einer für alle Versuche konstant eingestellten Kanalzahl von 2000 zu 4,26 keV.

Die durch das Präparat verursachte Linienverbreiterung wurde zu  $\leq 13,6$  keV berechnet und ist annähernd gleich der durch sämtliche elektronischen und statistischen Einflüsse bedingten Verbreiterung von 13,3 keV.

### 3.3. Meßkurven

Die maximale Energieauflösung, welche mittels eines Halbleiterdetektors hoher Energieauflösung und geeigneter Präparat-Blenden, Abb. 12, erzielt wurde beträgt  $\Delta E = 19$  keV. Bei einer Trennung der sich um 48 keV unterscheidenden intensivitätsreichsten Energieanteile der Isotope  $^{234}\text{U}$  und  $^{233}\text{U}$  bedeutet dies eine Aufspaltung zu  $\approx 90$  %. Die letztlich aufgrund der Geometrie erzielte Energieauflösung von  $\Delta E = 19$  keV kann für die Häufigkeitsanalyse nicht ausgenutzt werden, da die damit verbundene äußerst geringe Nachweiswahrscheinlichkeit von  $< 0,001$  % nicht ausreichend ist. Die Bestimmung der Isotopenanreicherung des Urans setzt außer einer genügenden Energieauflösung eine solche Nachweiswahrscheinlichkeit voraus, die den statistischen Fehler möglichst klein und die Meßzeit in angemessenen Grenzen hält.

Durch Änderung der Geometrie wurde für diese Häufigkeitsanalyse eine obere Grenze der Energieauflösung von 25 keV und eine untere Grenze der Nachweiswahrscheinlichkeit von 0,5 % festgesetzt. Die aufgrund dieser Daten nach einer Meßzeit von 72 h gewonnenen Gesamtimpulse des Alpha-Spektrums lieferten für die Bestimmung der einzelnen Anreicherungsgrade der Uranisotope eine Genauigkeit von  $\pm 10$  %.

Diese Genauigkeit kann natürlich durch eine längere Aufnahmezeit des Spektrums verbessert werden. Wenn man die obere noch zulässige Grenze der Meßzeit von 30 Tagen berücksichtigt, so kann der relative Fehler optimal den Wert  $\pm \frac{1}{\sqrt{10}} \cdot 10$  %, also  $\pm 3$  % erreichen.

Da es bei der Isotopenhäufigkeitsanalyse nur auf Relativwerte der Radioaktivitäten der einzelnen Uranisotope ankommt, kann auf eine Absolutbestimmung verzichtet werden. Sollten Absolutwerte trotzdem in manchen Fällen von Interesse sein, lassen sie sich ohne größeren Aufwand mit Hilfe von Absolutmessungen oder einfacher noch durch Vergleich mit Standard-Präparaten ermitteln. In den Abb. 8 bis 11 sind einige gemessene Alpha-Spektren dargestellt.

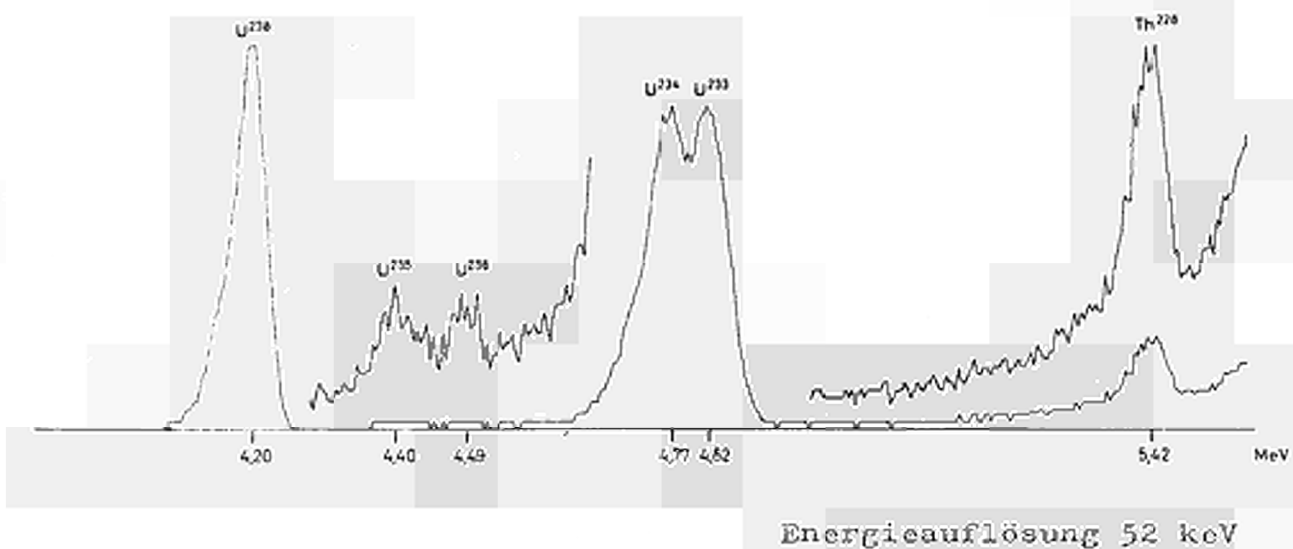
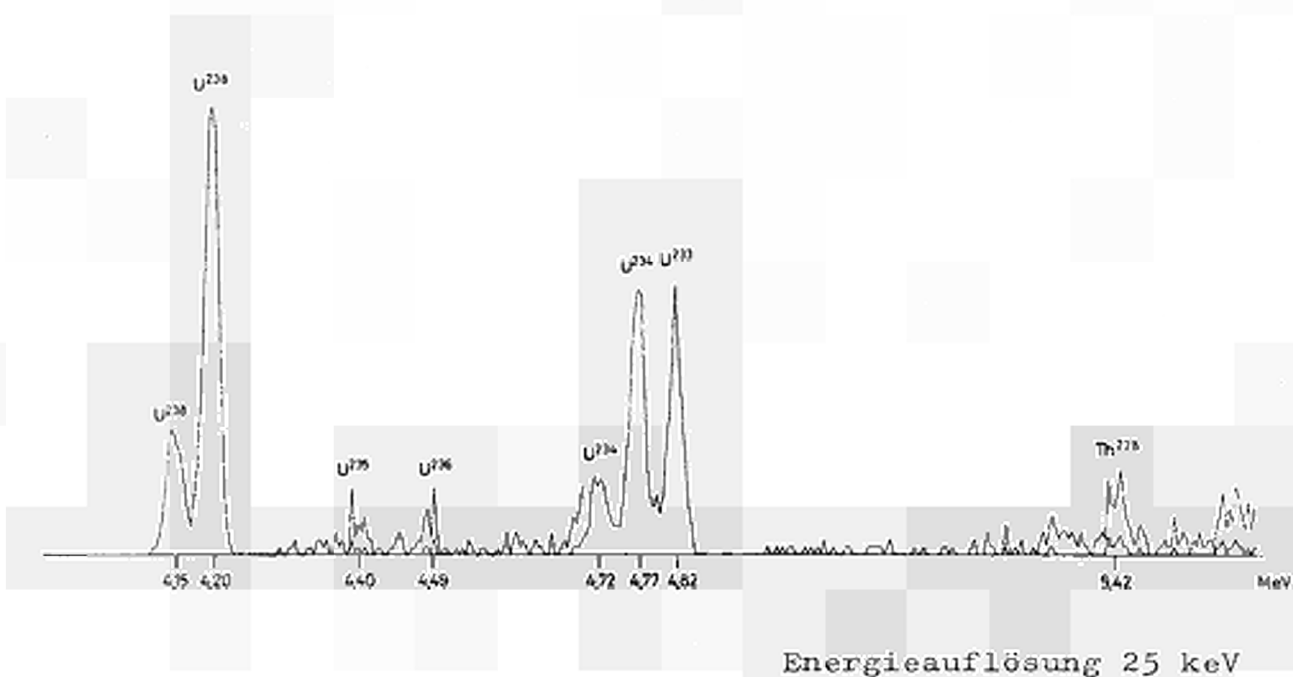


Abb. 8 : Alpha-Spektrum von Uran

0,4	%	$^{235}\text{U}$
0,002	%	$^{233}\text{U}$

Meßzeit 72 h

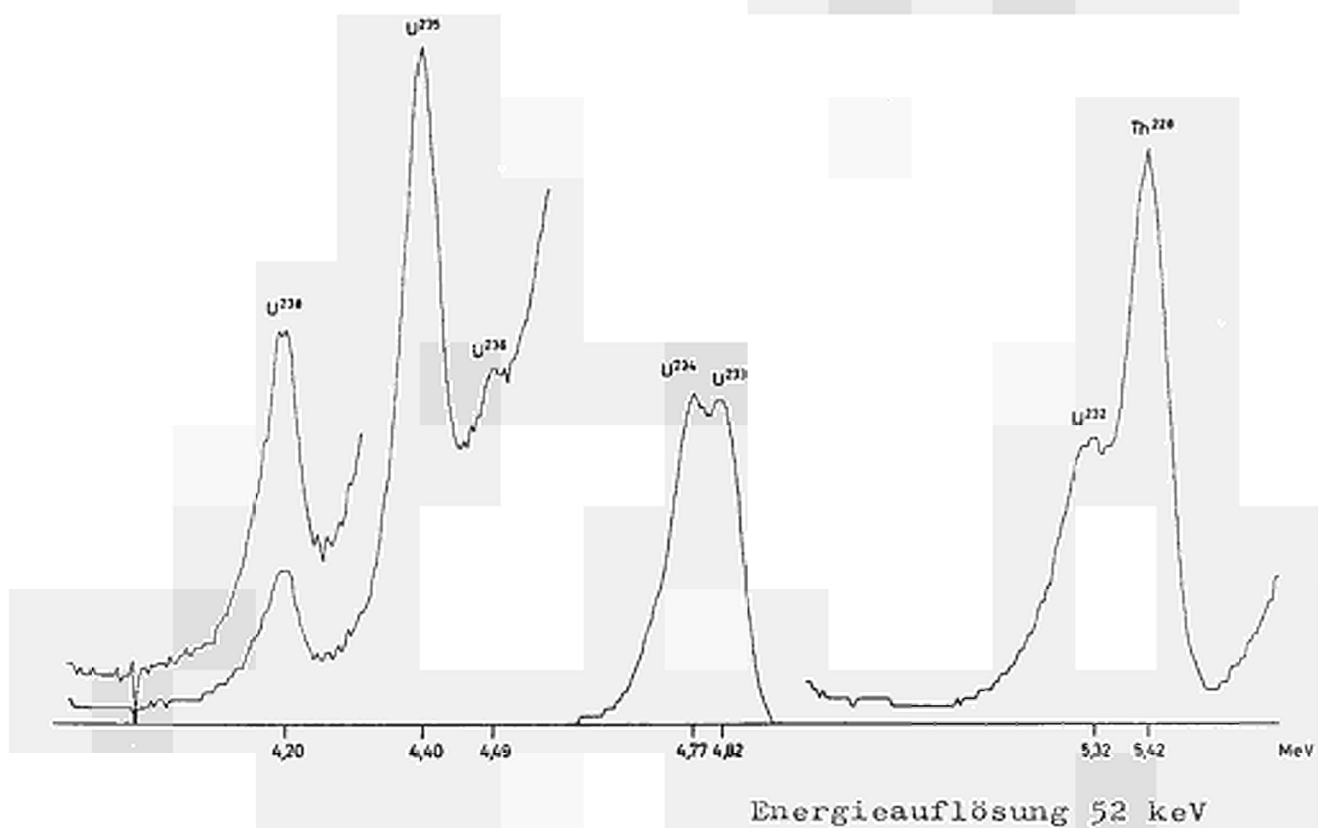
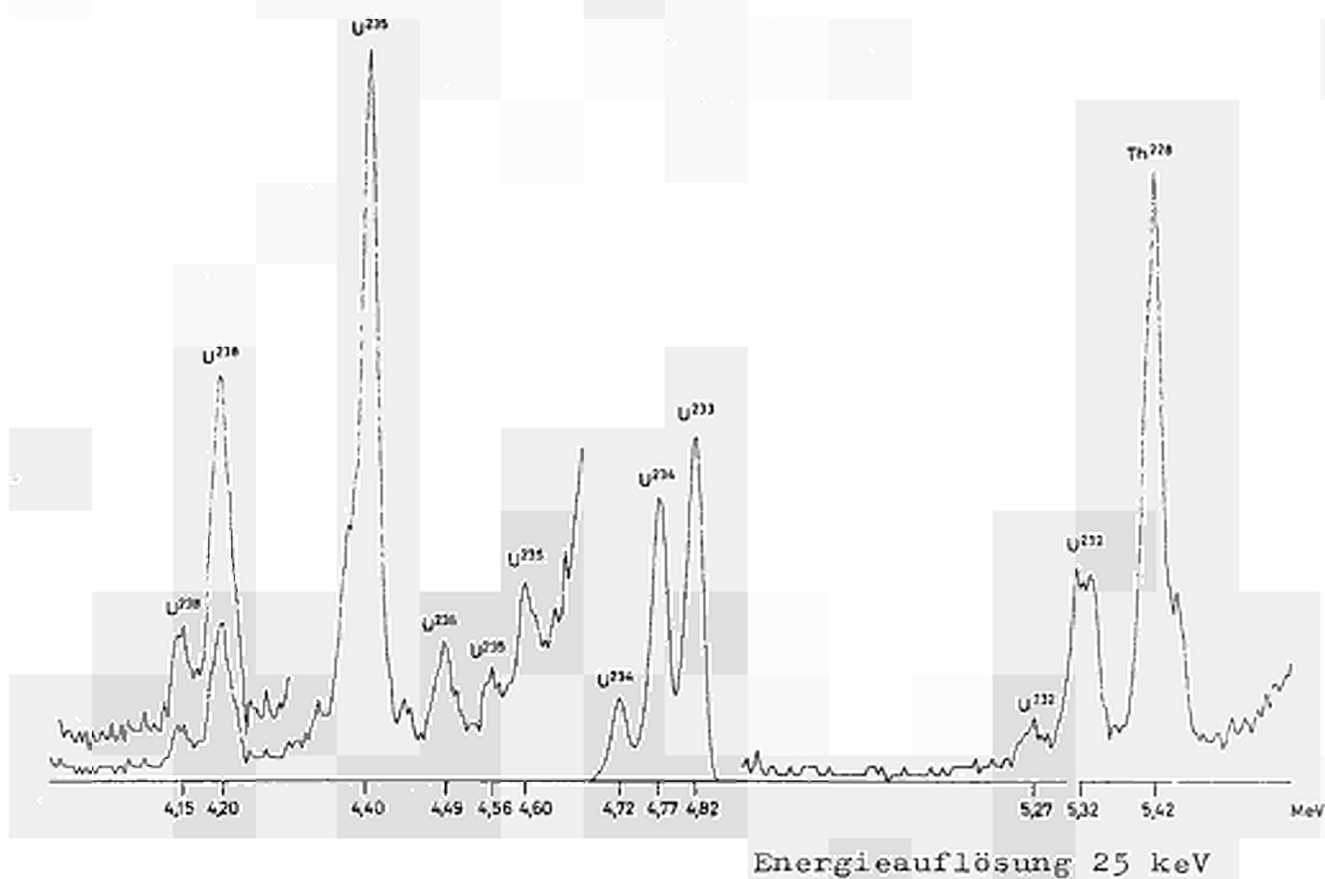


Abb. 9 : Alpha-Spektrum von Uran

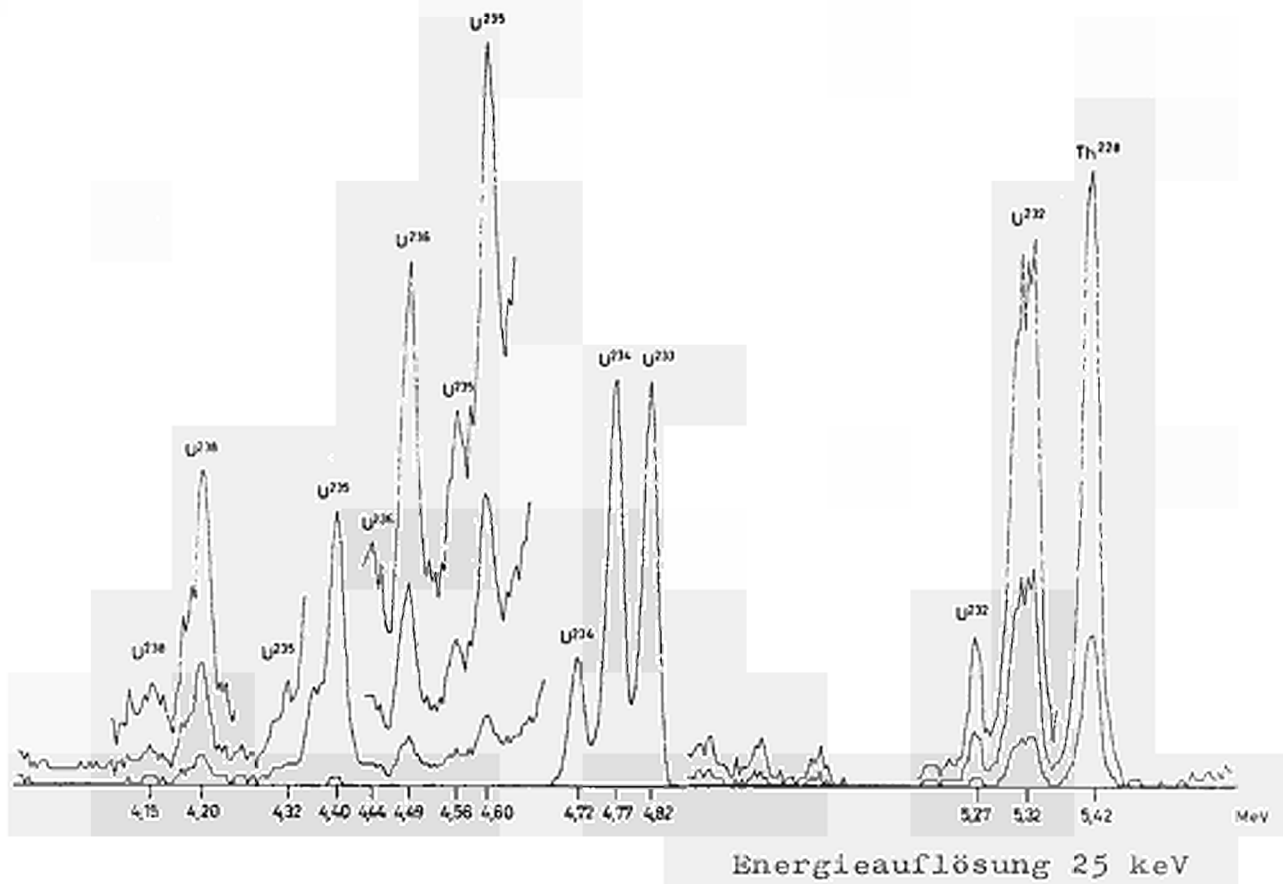
54 %

0,45 %

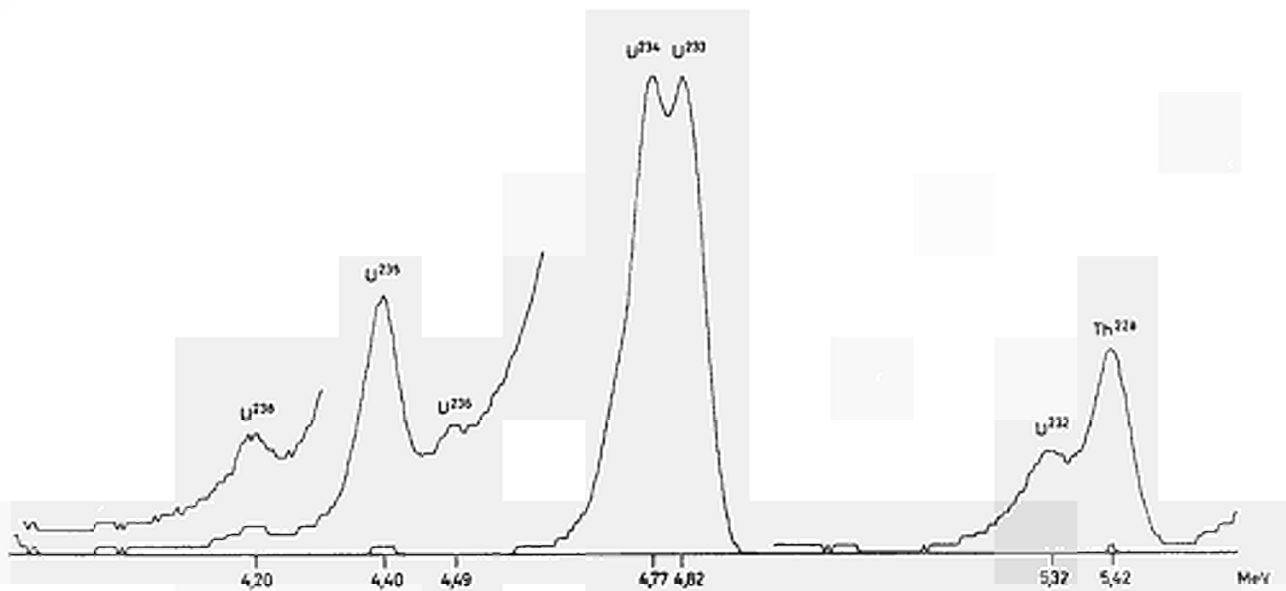
$^{235}\text{U}$

$^{233}\text{U}$

Meßzeit 72 h



Energieauflösung 25 keV



Energieauflösung 52 keV

Abb. 10 : Alpha-Spektrum von Uran

90 % <sup>235</sup>U  
0,7 % <sup>233</sup>U

Meßzeit 72 h

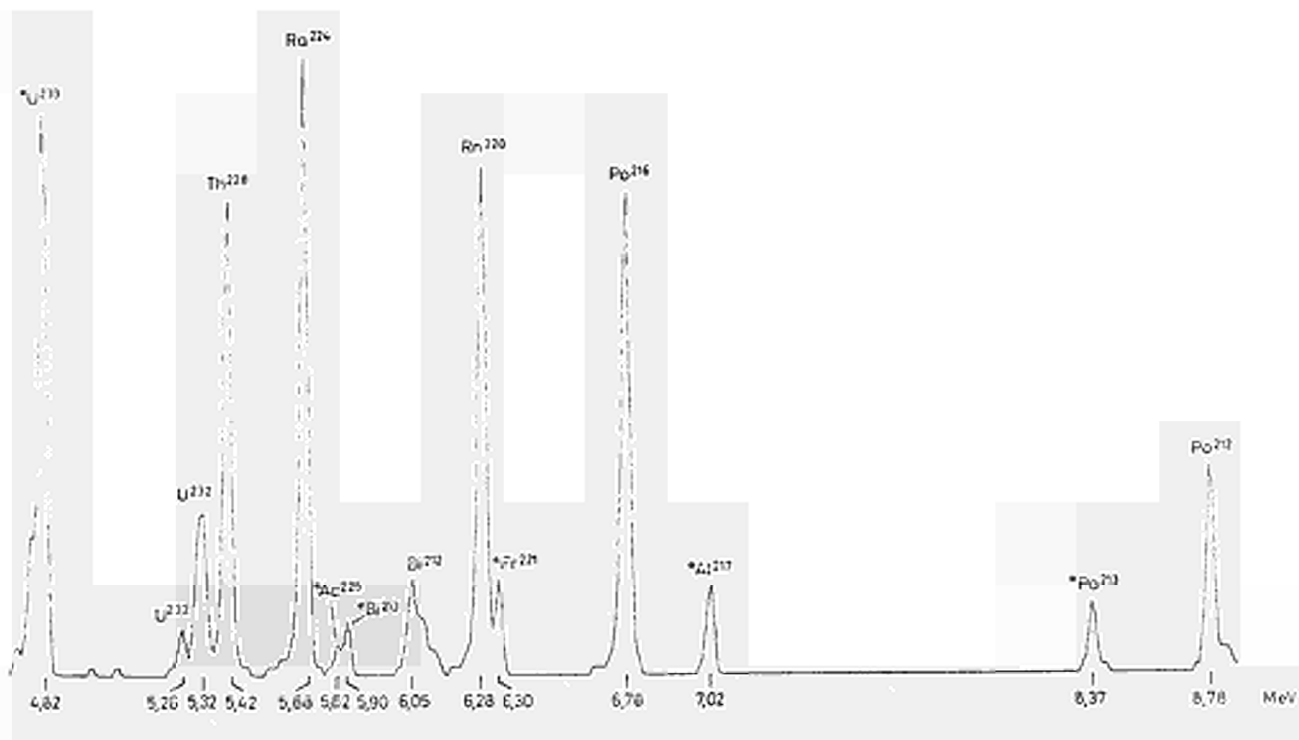
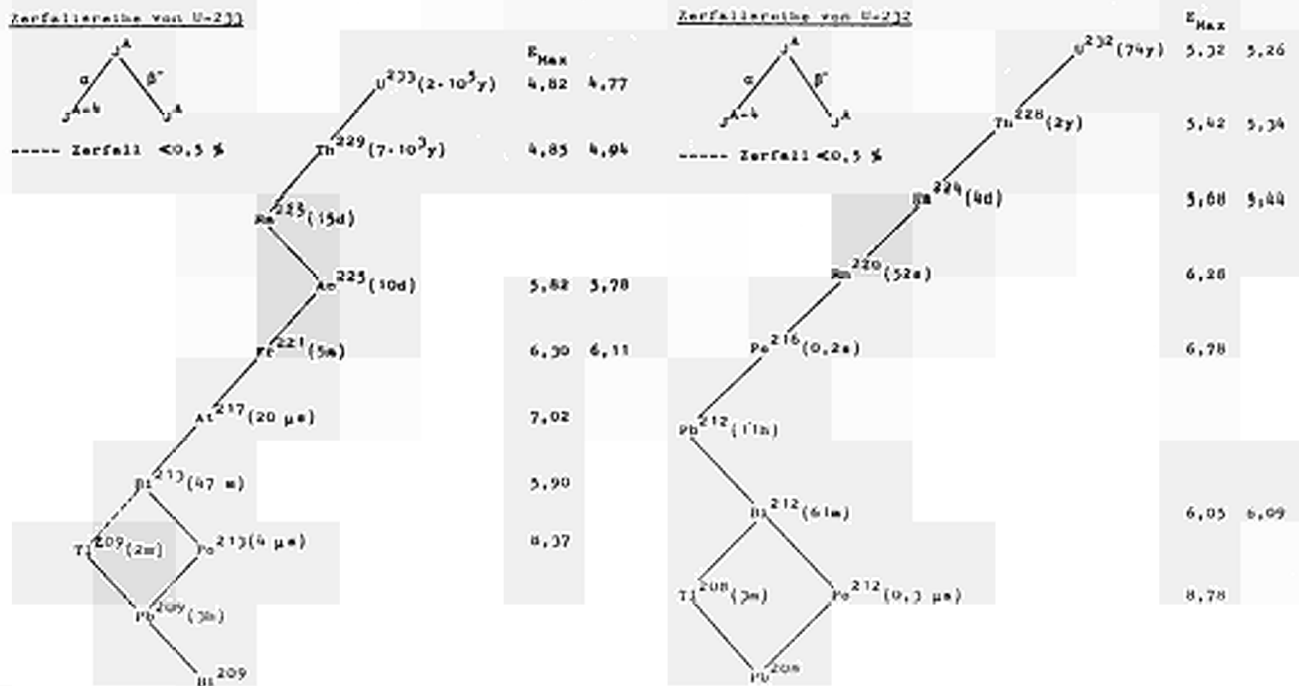


Abb. 11 : Alpha-Spektrum der Folgeprodukte des Zerfalls von  $^{233}\text{U}$  und  $^{232}\text{U}$  (Energieauflösung 25 keV)  
 Aufnahme des Spektrums mit Halbleiterdetektor von 25 mm<sup>2</sup>  
 Zählfläche und 17 keV Energieauflösung

### 3.4. Vergleich verschiedener Alpha-Detektoren

Zur Veranschaulichung der Leistungsfähigkeit verschiedener Detektoren wurden Vergleichsmessungen mit den beiden erwähnten Halbleiterdetektoren sowie der Alpha-Ionisationskammer durchgeführt. Der Einfluß des Energieauflösungsvermögens der Detektoren von verschiedenen Präparat-Blenden ist in Abb. 12 graphisch dargestellt.

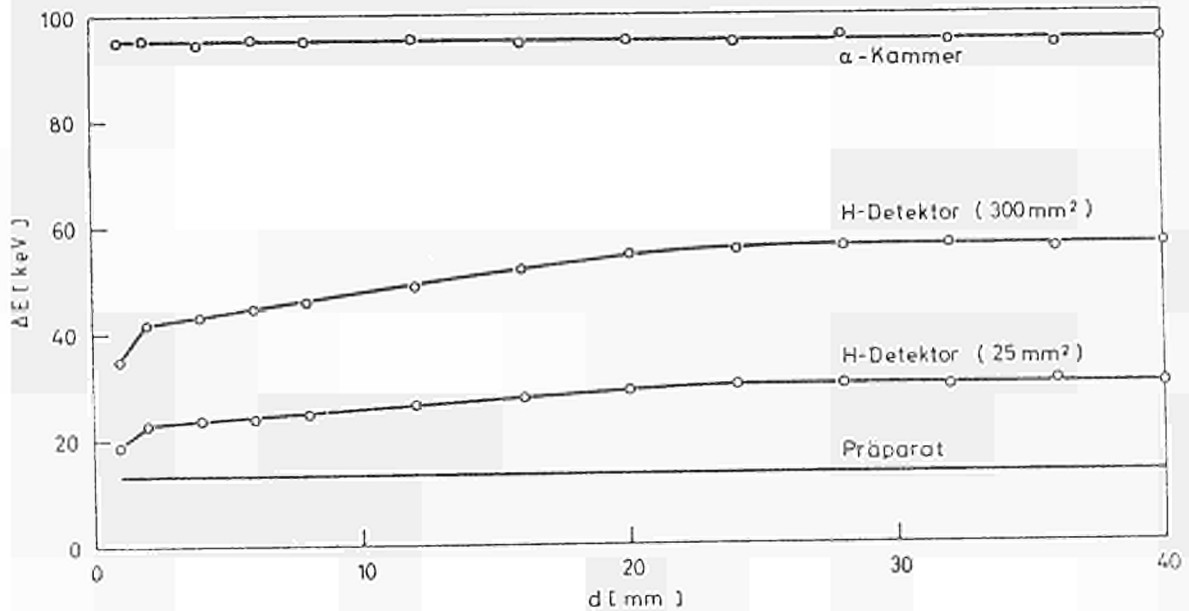


Abb. 12 : Energieauflösungsvermögen verschiedener Detektoren  $\Delta E$  in Abhängigkeit vom Durchmesser  $d$  der Präparat-Blenden

Die Alpha-Ionisationskammer besitzt für alle Blenden die gleiche Energieauflösung. Die Halbleiterdetektoren dagegen zeigen ein anderes Verhalten infolge des Einflusses der Geometrie Präparat-Detektor. Der stärkere Kurvenabfall zwischen 2 mm und 1 mm Blendendurchmesser deutet auf schmale und wenig divergierende Strahlenbündel hin, die bevorzugt die Mittelzone der Zählfläche bestrahlen.

Einen Vergleich der Ansprechwahrscheinlichkeit der Detektoren bei verschiedenen Präparat-Blenden zeigt Abb. 13. Hier ist zu erkennen, daß die Registriereigenschaften der Alpha-Ionisationskammer und des Halbleiterdetektors mit 300 mm<sup>2</sup> Zählfläche bei Blendendurchmesser  $d \leq 16$  mm annähernd dieselben sind. Wenn die Energieauflösung der beiden Detektoren zum Vergleich herangezogen wird, erkennt man, daß bei Präparat-Blenden  $d \leq 16$  mm ein Halbleiterdetektor mit 300 mm<sup>2</sup> Zählfläche einer Alpha-Ionisationskammer in jedem Falle vorzuziehen ist.



Man sieht weiterhin, daß bei sehr kleinen Blenden die Ansprechwahrscheinlichkeit der verwendeten Halbleiterdetektoren und auch der Alpha-Ionisationskammer alle in derselben Größenordnung liegen. Das aufgrund der geringen Blendenöffnung schmale und wenig divergierende Strahlenbündel trifft hier nur die Mittelzone der Halbleiterdetektoren, wodurch die volle Zählfläche für die Strahlung nicht in Erscheinung tritt.

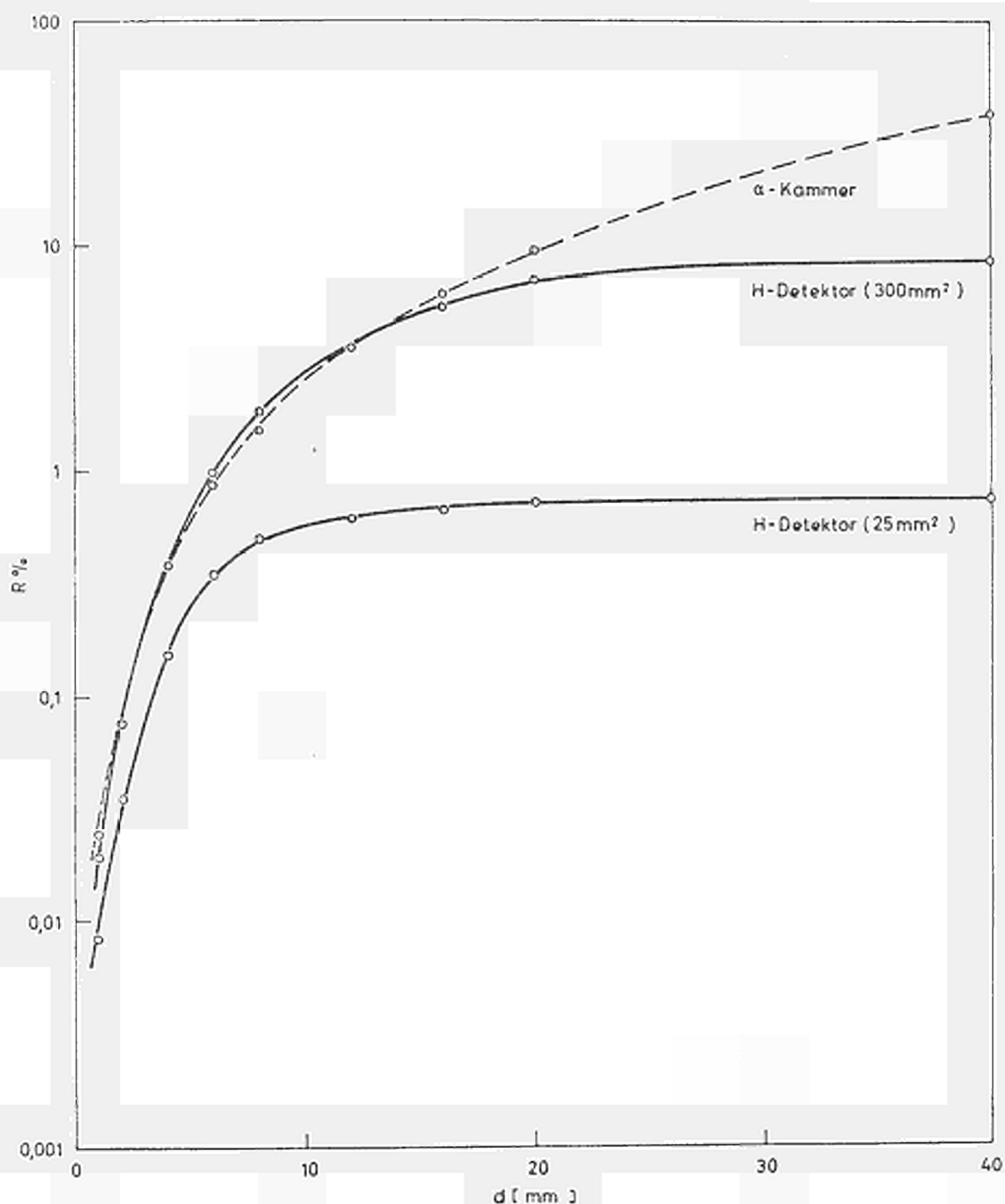


Abb. 13 : Ansprechwahrscheinlichkeit  $R$  in % verschiedener Detektoren in Abhängigkeit vom Durchmesser  $d$  der Präparat-Blenden

#### 4. Leistungsfähigkeit und Grenzen der Alpha-Spektrometrie

Die Genauigkeit der alpha-spektrometrischen Isotopenhäufigkeitsanalyse des Urans ist einmal von der Güte des Alpha-Spektrums und zum anderen von der Genauigkeit der Integration einzelner Energieanteile abhängig. Gelänge es, Präparate homogener monomolekularer Schicht, linienhafte und exakt parallele Strahlenbündel herzustellen, sowie sämtliche Rauschanteile von Detektor und Elektronik durch besondere Maßnahmen (z.B. Kühlung) auf einen extrem kleinen Wert herabzusetzen, so wäre die obere Grenze der Energieauflösung für die Alpha-Spektrometrie erreicht. Diese Grenze ist durch die statistische Schwankung der Anzahl gebildeter Ladungsträger, aufgrund der Ionisierungsenergie des Detektormaterials festgelegt und beträgt in dem zu untersuchenden Energiebereich für Silizium  $\approx 6$  keV. Läge ein solches ideales Spektrum vor, so gäbe es trotzdem immer noch einzelne Energieanteile, die nicht genügend getrennt werden könnten, wie z.B. die sich um 1 keV unterscheidenden Alpha-Linien von :

$^{234}\text{U}$  bei 4,773 MeV mit 72 % Intensität

$^{233}\text{U}$  bei 4,772 MeV mit 1,5% Intensität

Aus diesem Grunde sind auch der Güte der Integration einzelner Energieanteile Grenzen gesetzt. In viel stärkerem Maße jedoch hängt die Genauigkeit der Integrationsmethode, aufgrund des statistischen Charakters des Kernzerfalls, von der Anzahl der integrierten Gesamtpulse ab. So geben die intensitätsschwächsten Isotope im wesentlichen die Genauigkeit der Häufigkeitsanalyse an. Da in der Praxis höchstens zwei Isotope gleichzeitig die niedrigsten Impulse, mit  $z_{\min}$  bezeichnet, aufweisen, wird als obere Grenze der Genauigkeit :

$$\approx \pm \sqrt{\frac{3}{z_{\min}}}$$

angenommen. Diese kann dadurch erhöht werden, daß man die Aufnahmezeit des Spektrums verlängert, wodurch sich ein kleinerer statistischer Fehler ergibt.

Bei entsprechend langen Aufnahmezeiten des Spektrums könnte die Anordnung benutzt werden, welche die maximale Energieauflösung von 19 keV festlegt, wodurch der Integrationsbereich für die einzelnen Verteilungskurven et-

was erweitert würde. Da jedoch die Genauigkeit der einzelnen Koeffizienten  $c_i$  fast ausschließlich von der Anzahl registrierter Impulse abhängt (statistischer Fehler), wird eine kleine Verbesserung der Auflösung keinen wesentlichen Vorteil bringen.

Andererseits läßt sich aber durch die Verlängerung der Meßzeiten eine geforderte Genauigkeit in gewissen Grenzen einstellen. Sie ist dann optimal gegeben, wenn der statistische Fehler die Größenordnung der anderen unveränderlichen Fehlerquellen erreicht. Des weiteren bietet die Möglichkeit, das Alpha-Spektrum mit Hilfe eines programmierten Rechenverfahrens auszuwerten, eine Steigerung der Genauigkeit, da auch hier der statistische Fehler infolge eines erweiterten Integrationsbereiches herabgesetzt wird.

Bekanntlich überwiegt die spezifische Aktivität des  $^{233}\text{U}$  bei weitem diejenige sämtlicher Uranisotope, siehe Abb. 8 bis 11. Obwohl die spezifischen Aktivitäten von  $^{233}\text{U}$  und  $^{234}\text{U}$  dieselbe Größenordnung besitzen, wird in der Praxis  $^{233}\text{U}$  aufgrund seiner Herkunft (Thorium-Brutzyklus) in wesentlich stärkerer Anreicherung vorhanden sein als  $^{234}\text{U}$ . Aus diesem Grunde werden schon bei dem normalerweise niedrig gehaltenen Anreicherungsgrad des  $^{234}\text{U}$  (Größenordnung  $\leq 1\%$ ) seine intensitätsreichsten Energieanteile durch die nahegelegenen Energieanteile des Isotops  $^{233}\text{U}$  vollständig überdeckt. Ein quantitativer Nachweis von  $^{234}\text{U}$  neben  $^{233}\text{U}$  ist nur dann möglich, wenn sich der Anreicherungsgrad des  $^{233}\text{U}$  zwischen 16 % und 260 % desjenigen von  $^{234}\text{U}$  bewegt. Oft interessiert nur die prozentuale Häufigkeit der beiden Isotope  $^{235}\text{U}$  und  $^{233}\text{U}$ , um z.B. größenordnungsmäßig den Brennstoffabbrand in einem Reaktor abschätzen zu können. Da die spezifische Aktivität von  $^{233}\text{U}$  um den Faktor 4000 größer als die des  $^{235}\text{U}$  ist, wird der Nachweis von  $^{235}\text{U}$  auch nur unter bestimmten Voraussetzungen möglich sein. Eine quantitative Analyse von  $^{235}\text{U}$  neben  $^{233}\text{U}$  ist durchführbar, wenn die Isotopenhäufigkeit des  $^{233}\text{U}$  höchstens 28 % derjenigen von  $^{235}\text{U}$  ausmacht.

Literatur :

- (1) E. Merz und H. Kirchner, Nukleonik 8, 241 (1966)
- (2) G. Dearnaley, Semiconductor Detectors for Nuclear Radiation  
E. and F.N. Spon, Lim., London (1966)
- (3) K. Siegbahn, Alpha-,Beta-, and Gamma-Spectroscopy, Volume I,  
North-Holland Publishing Company, Amsterdam (1965)
- (4) N. Nesmejanow, Praktischer Leitfaden der Radiochemie, VEB  
Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig (1962)
- (5) H.C. Parker, H. Bildstein und H. Getoff, Nucl.Instr. and  
Methods 26, 61 (1964)

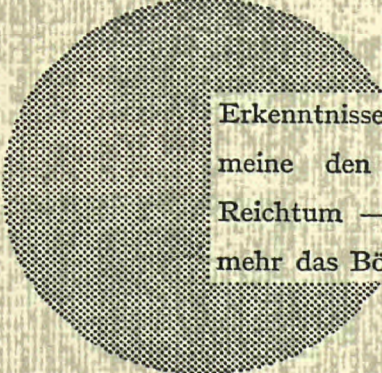
**AN UNSERE LESER**

Alle Euratom-Berichte werden nach Erscheinen in der von der Zentralstelle für Information und Dokumentation (CID) herausgegebenen Monatszeitschrift **EURATOM INFORMATION** angezeigt. Abonnements (1 Jahr : DM 60) und Probehefte sind erhältlich bei :

**Handelsblatt GmbH**  
**"Euratom Information"**  
**Postfach 1102**  
**D-4 Düsseldorf (Deutschland)**

oder

**Centrale de vente des publications**  
**des Communautés européennes**  
**37, rue Glesener**  
**Luxembourg**



Erkenntnisse verbreiten ist soviel wie Wohlstand verbreiten — ich meine den allgemeinen Wohlstand, nicht den individuellen Reichtum — denn mit dem Wohlstand verschwindet mehr und mehr das Böse, das uns aus dunkler Zeit vererbt ist.

**Alfred Nobel**

## VERTRIEBSSTELLEN

Alle Euratom-Berichte sind bei folgenden Stellen zu den auf der ersten Rückseite des Umschlags angegebenen Preisen erhältlich (bei schriftlicher Bestellung bitte die EUR-Nummer und den Titel, die beide auf der ersten Umschlagsseite jedes Bericht stehen, deutlich angeben).

### CENTRALE DE VENTE DES PUBLICATIONS DES COMMUNAUTES EUROPEENNES

37, rue Glesener, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

#### BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE  
40-42, rue de Louvain - Bruxelles  
BELGISCH STAATSBAD  
Leuvenseweg 40-42 - Brussel

#### LUXEMBOURG

CENTRALE DE VENTE  
DES PUBLICATIONS DES  
COMMUNAUTES EUROPEENNES  
37, rue Glesener - Luxembourg

#### DEUTSCHLAND

BUNDESANZEIGER  
Postfach - Köln 1

#### NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ  
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

#### FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE  
DES PUBLICATIONS DES  
COMMUNAUTES EUROPEENNES  
26, rue Desaix - Paris 15°

#### UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE  
P.O. Box 569 - London S.E.1

#### ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO  
Piazza G. Verdi, 10 - Roma

EURATOM — C.I.D.  
29, rue Aldringer  
Luxembourg

CDNA04329DEC