

Die Geschichte der Kernspaltung

11 g Ammoniumdiuranat waren 16 Stunden mit verlangsamen (thermischen) Neutronen bestrahlt worden, die Bestrahlung wird um 11:36 Uhr beendet. Die Probe wird dann in Salzsäure gelöst, und nach Zugabe von 1,5 g Bariumchlorid (als Trägersubstanz) wird das Barium mit starker Salzsäure ausgefällt; die durch die Bestrahlung gebildeten Radiumisotope werden hierbei mitgefällt. Der Niederschlag wird abfiltriert und so von der Uranlösung getrennt. Das Gemisch von Barium- und Radiumchlorid wird dann in heißem Wasser gelöst und so lange tropfenweise mit starker Salzsäure versetzt, bis die Lösung trüb wird. Durch Abkühlen der Lösung kristallisiert ein Teil des Bariumchlorids aus und wird abfiltriert; durch weiteres Abkühlen des Filtrats werden zwei weitere Kristallfraktionen gewonnen. Nach der Abtrennung der ersten Kristallfraktion kann dann bereits mit den Zählrohrmessungen begonnen werden. In der Zeit von 12:05 Uhr bis 13:22 Uhr wird dann die Zählrate jeweils gleicher Mengen der drei Fraktionen (350 mg BaCl_2) alternierend mit dem gleichen Zählrohr gemessen. Die Aktivität der Proben nimmt während dieser Zeitspanne kontinuierlich ab (für die erste Fraktion von 387 auf 132 Impulse/Minute), dies ist durch den radioaktiven Zerfall von RaII und RaIII bedingt. Eine sprunghafte Abnahme der Aktivität zwischen der ersten und zweiten oder der zweiten und dritten Kristallfraktion ist jedoch nicht zu erkennen. Eine Anreicherung der Radiumisotope in der Kopffraktion hat also nicht stattgefunden.

Aus verschiedenen Gründen mussten sie Barium von Radium trennen. Zum einen schirmte Ba die ohnehin schwache Strahlung ab, andererseits wollte sie sicher sein, dass es sich um Ra handelt. Sie waren erstaunt, dass die Trennung von Ba nicht klappte.

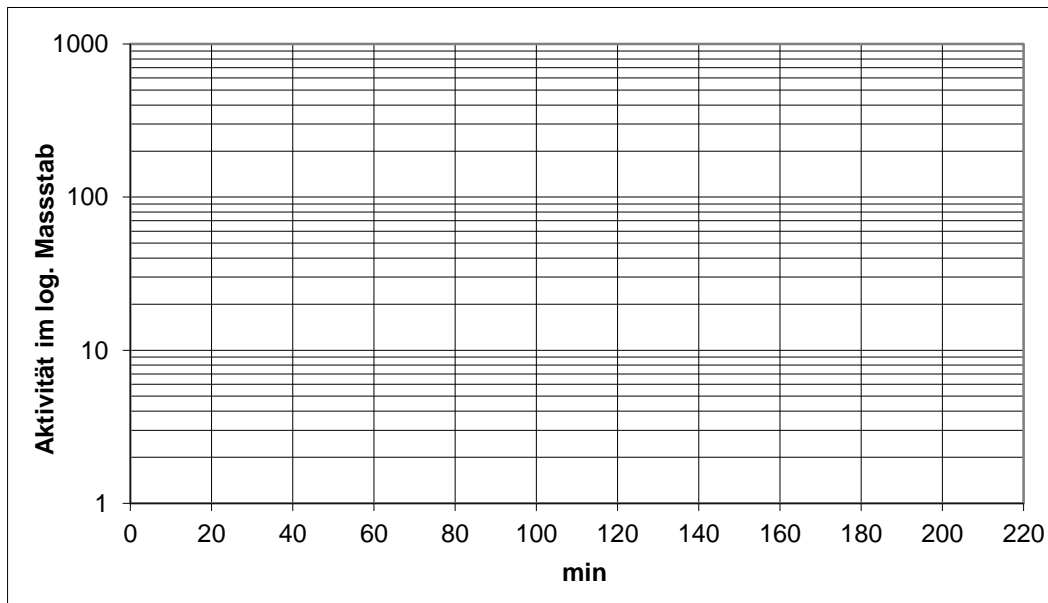


Fig. 1: Uran mit Neutronen bestrahlt. Extraktion mit verdünnter Salzsäure. Zugabe von Bariumchlorid und Fällung mit konz. Salzsäure. Die Halbwertszeiten entsprechen der Steigung (y-Achse als lg einbezogen, also 2 statt 100, da $100 = 10^2$.) Bsp. Die Steigung von RaII ist hier -0.022 (2.2 pro 100 min). Die Halbwertszeit ist gleich $\log(e) \cdot \ln(2) / 0.022 = \text{ca. } 14 \text{ min}$. Die ungefähre Halbwertszeit zu Beginn der Kurve der Gesamtaktivität wird so abgeschätzt, ebenso die Steigung am Ende der Gesamtaktivität. Wartet man nach der Bestrahlung etwa 1 h, hat man praktisch nur noch die Aktivität der zweiten Substanz. Jetzt kann deren Halbwertszeit schon genauer bestimmt werden. Durch Differenzbildung erhält man auch eine genauere Halbwertszeit der ersten Substanz usw. Wartet man mehr als eine Stunde wird auch praktisch kein AcII mehr nachgebildet aus RaII. Eine Umkristallisation liefert jetzt reines RaIII.

Ein Indikatorversuch sollte Klarheit bringen. In diesem Versuch wird mit BaBr_2 gefällt, weil dieses besser anreichert. Es wurde als Indikator Ra-228 eingesetzt. Eine Bromidfraktionierung funktionierte im Wesentlichen so:

Die Uranprobe ist diesmal 45 Stunden lang bestrahlt worden, die Mitfällung der Reaktionsprodukte erfolgt wiederum an Bariumchlorid (mit HCl als Fällungsmittel), die anschließende Fraktionierung jedoch an Bariumbromid (mit HBr als Fällungsmittel). Hierzu wird die Barium- und Radium-Ionen in Mischung aus Barium- und Radiumchlorid in Form ihrer Carbonate ausgefällt und die Fällung in Bromwasserstoffsäure HBr gelöst. Durch tropfenweise Zugabe weiterer HBr wird die Lösung fraktioniert kristallisiert. Vier Kristallfraktionen von Bariumbromid sind diesmal das Ergebnis. Mit dem Beginn der Messungen wartet man etwa eine Stunde, dann liegt nur noch RaIII vor.

Im Indikatorversuch wird noch BaBr_2 zugegeben, nachdem nach der obigen Methode die Ac-Folgeprodukte entfernt wurden.

Der Versuch zur Prüfung von RaIII wird am 17. Dezember 1938 durchgeführt. Nachdem eine Uranprobe über Nacht bestrahlt worden war, bleibt sie 2,5 Stunden stehen, um das kurzlebige RaI und RaII zerfallen zu lassen. Die Folgeprodukte AcI und AcII werden dann entfernt und als Indikator wird gereinigtes MsTh1 (Ra-228) zugegeben. Zur Mitfällung des RaIII und des MsTh1 werden 3 Gramm Bariumbromid zugesetzt.

Die Fraktionierung ergibt drei Fraktionen mit je 500 mg BaBr_2 . Um zu entscheiden, wie sich die beiden Radium-Isotope verhalten, muss die Aktivität der Fraktionen über mehrere Tage hinweg gemessen werden, da es hierzu ja drei Beiträge gibt:

RaIII, das mit einer HWZ von 86 Minuten zerfällt,

MsTh1 (Ra-228), dessen Aktivität während der Versuchsdauer konstant bleibt (HWZ: 6,7a),

MsTh2 (Ac-228), das bei der Fraktionierung in der Mutterlauge zurückbleibt, aber während der Messdauer aus MsTh1 nachgebildet wird (HWZ: 6,13h).

Erst anhand einer graphischen Auswertung kann dann das Ergebnis ermittelt werden. Die Kurven zeigen in den ersten Stunden einen steilen Aktivitätsabfall, der durch den Zerfall von RaIII verursacht ist. Dieser Abfall wird gebremst und schließlich in einen Aktivitätsanstieg umgemünzt durch das aus MsTh1(Ra-228) nachgebildete MsTh2(Ac-228), das nach ca. 60 Stunden seinen Endwert erreicht hat und dann im radioaktiven Gleichgewicht mit seiner langlebigen Muttersubstanz MsTh1(Ra-228) ist. Dieser Endwert liegt für die drei Fraktionen bei 67,6 / 25 / 11 Impulsen/Minute. Er besagt, dass das MsTh1(Ra-228) in den Bariumbromidfraktionen 1 bis 3 in Konzentrationen vorhanden ist, die sich wie 6,1 : 2,3 : 1 verhalten; das natürliche Radiumisotop hat sich also wie erwartet in der Kopffraktion stark angereichert.

Der Aktivitätsanteil des RaIII bei jeder der drei Fraktionen ergibt sich, wenn von der jeweils gemessenen Aktivität die Anteile abgezogen werden, die dem MsTh1 und dem nachgebildeten MsTh2 zuzuordnen sind. Trägt man diese bereinigten Messwerte in Abhängigkeit von der Zeit in ein Diagramm mit halblogarithmischem Maßstab ein, so liegen die Messpunkte für jede Fraktion auf einer Geraden, deren Neigung der HWZ des RaIII entspricht; extrapoliert man diese Geraden auf den Zeitpunkt Null, so ergeben sich für die drei Fraktionen Aktivitäten von 81, 72 und 81 Impulsen/Minute. Innerhalb der Fehlergrenzen der Messungen ($\pm 10\%$ angesichts der geringen Zählraten) ist die Konzentration des RaIII in den drei Bariumbromidfraktionen also konstant, eine Anreicherung hat nicht stattgefunden. RaIII verhält sich also auch bei diesem Versuch nicht wie der zugesetzte Radiumindikator MsTh1, sondern wie natürliches Barium.

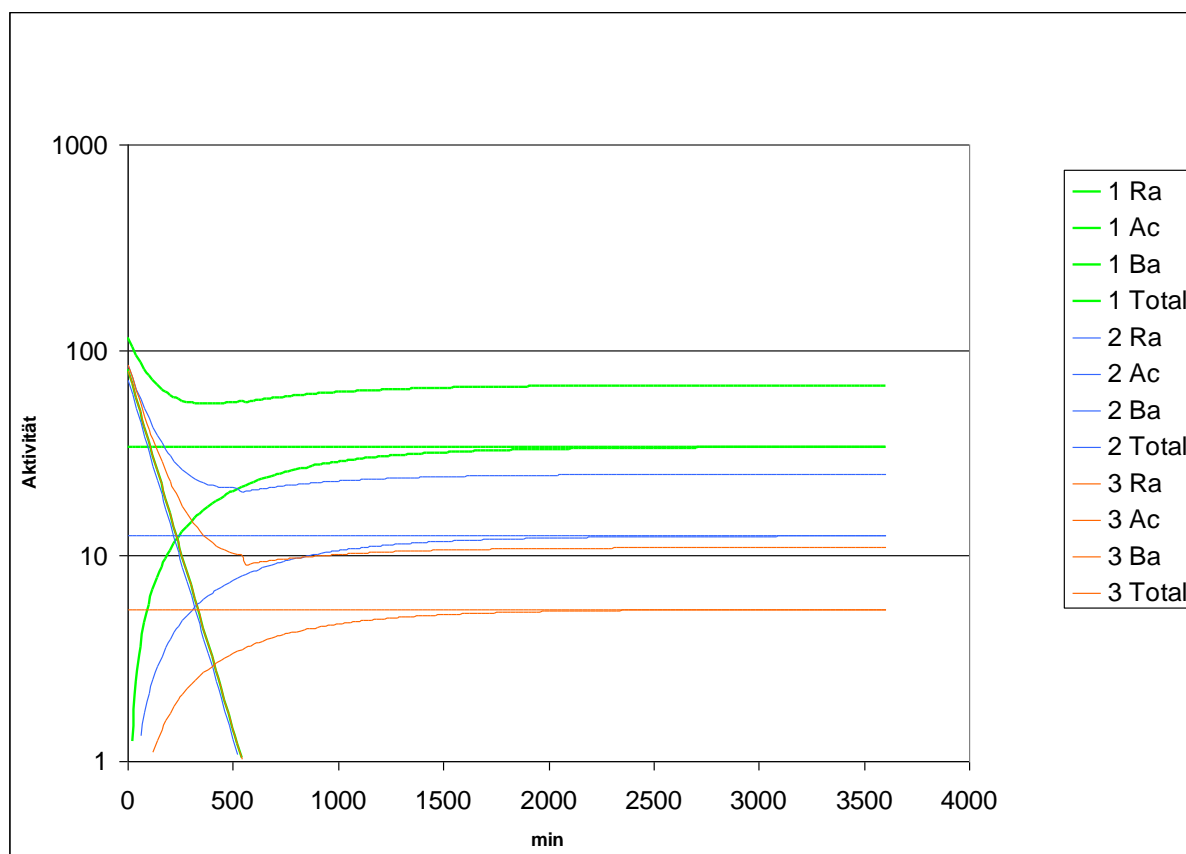


Fig. 2: Der Indikatorversuch mit Zugabe von Ra-228, dessen Aktivität wegen der langen Halbwertszeit während der Messdauer konstant bleibt. Allerdings wird daraus Ac-228 (Kurvenanstieg) nachgebildet. Sein Anteil an der Gesamtaktivität ist im Gleichgewicht ab etwa 2500 min die Hälfte der Gesamtaktivität und wird von dieser abgezogen. Die andere Hälfte ist das konstant strahlende Ra-228 und wird auch von der Gesamtaktivität abgezogen. Es bleiben die reinen Bariumanteile.

Die Versuche von Hahn und Strassmann grafisch