

Die energetischen Verhältnisse beim 44-Stunden-Lanthan und Element 93

Von KURT PHILIPP und JOHANN RIEDHAMMER

Aus dem Institut für kernphysikalische Meßmethoden in Freiburg

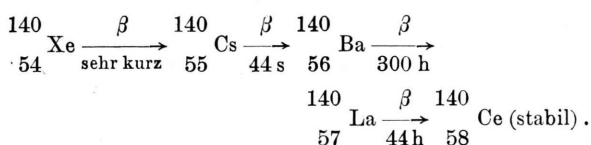
(Z. Naturforschg. 1, 372–376 [1946]; eingegangen am 6. März 1946)

1. Das aus der Uranspaltung gewonnene 44-Stdn.-Lanthan wurde nach verschiedenen Methoden auf seine energetischen Verhältnisse hin untersucht. Es wurde eine einheitliche β -Strahlung gefunden, die mit γ -Strahlung gekoppelt ist. Die maximale β -Energie ist 1,5 MeV. Für die γ -Strahlung ergibt sich ein Absorptionskoeffizient von $0,53 \text{ cm}^{-1}$ Blei, entsprechend einer Energie von 1,82 MeV. Die γ -Strahlung ist in mehrere Komponenten aufgespalten. Die Halbwertszeit des 44-Stdn.-Lanthans ist zu $43,7 \pm 0,5$ Stdn. bestimmt worden.

2. Die Untersuchung des Elements 93 ergab ebenfalls ein einfaches β -Spektrum, das mit einer γ -Strahlung gekoppelt ist. Die maximale β -Energie ist 0,48 MeV. Aus Compton-Koinzidenzmessungen folgt eine γ -Energie von etwa 0,5 MeV. Durch Elektrolyse konnte ein für eine Untersuchung im magnetischen β -Spektrographen geeignetes Präparat in dünner Schicht hergestellt und das Elektronenlinienspektrum ausgemessen werden. Aus den Elektronenlinien ergeben sich 3 γ -Linien von 208, 226 und 276 KV. Als Halbwertszeit des Elements 93 ist ein Wert von $2,31 \pm 0,11$ Tagen ermittelt worden.

I. Das 44-Stdn.-Lanthan

Die bei der Uranspaltung entstehenden primären Spaltprodukte sind im allgemeinen wegen ihres Neutronenüberschusses radioaktiv und wandeln sich durch Elektronenemission über mehrere Zwischenstufen in stabile Isotope um. Dabei fallen manche aktive Isotope in solcher Menge an, daß sie isoliert und bezüglich ihrer Anregungszustände untersucht werden können. Dies konnten wir beim 44-Stdn.-Lanthan durchführen, das in folgender Reihe auftritt:



Ob das Xe hierbei ebenfalls Folgeprodukt sein kann, weiß man noch nicht.

A. Herstellung des 44-Stdn.-Lanthans

500 bis 1000 g Ammonuranat wurden mit langsamen Neutronen bis zu 48 Stdn. bestrahlt, dann in Salzsäure gelöst und mit 100 mg Bariumchlorid versetzt. Das Bariumchlorid wurde durch Zusatz von 37-proz. Salzsäure wieder ausgefällt, um es von anderen Spaltprodukten und Uran X zu trennen. Etwa 3 Stdn. nach der Ausfällung des Bariumchlorids waren die Bariumisotope, welche außer

dem Barium von 13 Tagen Halbwertszeit Lanthan und Cer nachbildeten, praktisch vollständig zerfallen. Durch Auflösen des Bariumchlorids in Wasser und erneutes Ausfällen mit konz. Salzsäure erhielt man ein von allen Verunreinigungen befreites Bariumchlorid. Nach etwa 90 Stdn. war aus dem Barium von 13 Tagen Halbwertszeit praktisch die Gleichgewichtsmenge an Lanthan von 44 Stdn. Halbwertszeit entstanden. Deshalb wurde zur schwach salzsauren Bariumlösung 1 mg inaktives Lanthan zugesetzt und durch kohlenstoffsaures Ammoniak in der Siedehitze als Lanthanhydroxyd gefällt.

B. Durchführung der Messungen

Zur Durchführung der Messungen wurden Einzelstoßverstärker in Neher-Harper-Schaltung, ein Koinzidenzverstärker nach Rossi und ein Untersezter 1:16 nach Forsman benutzt. Das Auflösungsvermögen für Koinzidenzen wurde aus der bekannten Gleichung $K = 2 \cdot \tau \cdot N_1 \cdot N_2$ zu $5 \cdot 10^{-7}$ Min. bestimmt. Die benutzten Zählrohre wurden mit Argon und Alkoholdampf gefüllt.

a) *Bestimmung der Halbwertszeit.* Es wurde über einen Zeitbereich von mehreren Tagen fortlaufend die Absorption der β -Strahlen verfolgt. Die aus den einzelnen Absorptionskurven folgende obere Grenze des β -Spektrums stimmte mit dem im Abschnitt b ermittelten Wert überein. Trägt man



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

nun die für ein und dieselbe Absorberdicke ermittelten Intensitäten in Abhängigkeit von der Zeit auf, so erhält man vollkommen parallel laufende Abfallskurven, die im Mittel in guter Übereinstimmung mit anderen Autoren eine Halbwertszeit von $43,7 \pm 0,5$ Stdn. ergeben. Demnach ist das vorliegende Präparat ein einheitlicher Körper.

b) *Obere Grenze des β -Spektrums*. Um die Form der Absorptionskurve möglichst frei von sekundären, durch die vorhandene γ -Strahlung hervorgerufenen Überlagerungseffekten zu erhalten, wurde die Absorption der β -Strahlen nach der von J.

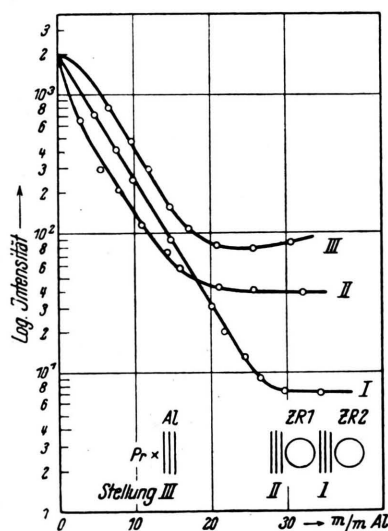


Abb. 1. Absorptionsmessung der primären β -Strahlen des 44-Stdn.-Lanthans mittels Koinzidenzen in Abhängigkeit von der Absorberstellung.

Riedhammer¹ ausgearbeiteten Absorptionsmethode mittels Koinzidenzen untersucht. Zwei Zählrohre mit je zwei Fenstern (20μ Cellophan) waren in Koinzidenz geschaltet. Der β -Strahler befand sich in einigen cm Entfernung vom Zählrohr 1, das mit einer Intensität von rund 1000 Teilchen pro Min. bestrahlt wurde. Die Aluminium-Absorber wurden zwischen Zählrohr 1 und Zählrohr 2 gebracht, und die Anzahl der Koinzidenzen wurde bei verschiedenen Absorberdicken gemessen. Durch diese Absorberstellung wurde erreicht, daß der von der γ -Strahlung im Aluminium-Absorber ausgelöste Sekundäreffekt nur im Zählrohr 2 zum Nachweis kam und somit keine Koinzidenz geben konnte. Eine Rückstreuung sekundärer Elektronen am Aluminium in das Zählrohr 1 konnte die

Zahl der zufälligen Koinzidenzen kaum beeinflussen. Abb. 1 zeigt deutlich, wie stark die Sekundäreffekte bei ungünstiger Stellung des Absorbers waren. Kurve I ergibt eine Halbwertsdicke von $0,0864 \text{ g Al/cm}^2$ und eine maximale Reichweite von $R = 0,675 \text{ g Al/cm}^2$, entspr. einer Energie von $1,5 \text{ MeV}$. Dieser Wert war zuvor von uns auch aus Wilson-Kammer-Aufnahmen gefunden worden.

c) *β - γ -Koinzidenzen*. Zur Klärung der Frage, ob das β -Spektrum mit der γ -Strahlung gekoppelt ist, wurde das Präparat zwischen ein Messingzählrohr von 2 mm Wandstärke (γ -Zählrohr) und ein Fensterzählrohr mit 20μ Cellophan (β -Zählrohr) gestellt. Zwischen Präparat und Fensterzählrohr wurden Absorptionsfolien geschaltet, um so die Zahl der Koinzidenzen der β - und γ -Strahlen in Abhängigkeit von der Absorption der β -Strahlen zu bestimmen. Nach Abzug eines Untergrundes, der auf das Vorhandensein von γ - γ -Koinzidenzen zurückzuführen war, ergab sich eine Halbwertdicke der β -Strahlen von $0,078 \text{ g Al/cm}^2$, entspr. einer maximalen Energie von $1,45 \text{ MeV}$. β - γ -Koinzidenzen traten bis zur oberen Grenze des β -Spektrums auf.

d) *Energie der γ -Strahlen*. Die γ -Energie ist erstens durch Bestimmung der Absorptionskoeffizienten der γ -Strahlen in Blei ermittelt worden, zweitens nach einem Koinzidenzverfahren von Bothe und Kolhörster² durch Messung der Absorption der von den γ -Strahlen in Aluminium erzeugten Compton-Elektronen. Die erste Methode ist in der von L. Meitner³ angegebenen Anordnung benutzt worden, bei der zunächst vor dem Zählrohr so viele Aluminiumabsorber eingeschaltet werden, bis die maximale Reichweite der sekundär erzeugten Compton-Elektronen erreicht war. Erst dann wurde durch das Einbringen von Blei-Absorbern vor dem Präparat die γ -Absorptionskurve bestimmt. Auf diese Weise wurde die Verfälschung der γ -Absorptionskurve durch Überlagerung von Sekundärelektronen verhindert. Der in Blei gefundene Absorptionskoeffizient beträgt $0,53 \text{ cm}^{-1}$, was einer γ -Energie von $1,80 \text{ MeV}$ entspricht. Die aus Compton-Koinzidenzen erschlossene γ -Energie ergab $1,83 \text{ MeV}$, die dazu gehörige maximale Reichweite der Comp-

² W. Bothe und W. Kolhörster, Naturwiss. **16**, 1045 [1928].

³ L. Meitner, Ark. Mat. Astron. Fysik **29**, A, N, 17 [1943].

¹ J. Riedhammer, Naturwiss. **32**, 232 [1944].

ton-Elektronen 0,702 g Al/cm², ihre Halbwertsdicke 0,135 g Al/cm².

e) γ - γ -Koinzidenzen. Zur weiteren Klärung der Kopplungserscheinungen wurde nach γ - γ -Koinzidenzen gesucht. Wie aus der Kurve II der Abb. 2 hervorgeht, konnte nach Abzug der zufälligen Koinzidenzen (Kurve III) von den Werten der Kurve I ein γ - γ -Effekt nachgewiesen werden, der mit der Halbwertszeit des 44-Stdn.-Lanthans abfiel. Der gefundene Abfall von ~ 45 Stdn. beweist, daß die γ - γ -Koinzidenzen dem Folgeprodukt Cer zuzuordnen sind. Die zufälligen Koinzidenzen fallen mit der halben Halbwertszeit des 44-Stdn.-Lanthans ab, da in der Formel für zufällige Koin-

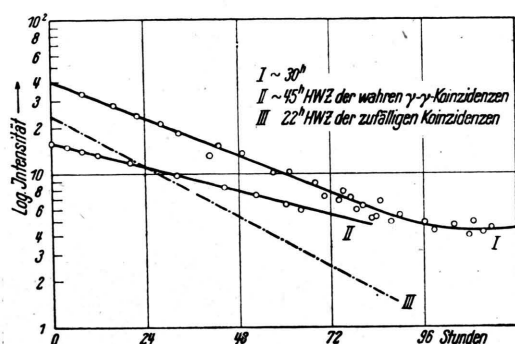


Abb. 2. Koinzidenzen beim 44-Stdn.-Lanthan.

zidenzen $K = 2 \cdot \tau \cdot N_1 \cdot N_2$ beide Größen N_1 und N_2 mit der Halbwertszeit des 44-Stdn.-Lanthans abfallen. J. Riedhammer⁴ hat unter Benutzung dieser Eigenschaft der zufälligen Koinzidenzen eines nach radioaktiven Gesetzen abfallenden Strahlers eine Methode zur verkürzten Messung langer Halbwertszeiten angegeben.

C. Diskussion der Ergebnisse

Für das ¹⁴⁰Lanthan wurde in Übereinstimmung mit früheren Messungen von O. Hahn und F. Straßmann⁵, H. Götte⁶, L. M. Marsh und S. Sugden⁷ eine Halbwertszeit von $43,7 \pm 0,5$ Stdn. gefunden. Über die energetischen Verhältnisse dieses 44-Stdn.-Lanthans lagen bisher so gut wie keine Ergebnisse vor. Die Angaben über die maximale β -Energie nach Götte sind nur roh abgeschätzt worden (~ 2 MeV). H. Born und W. Seelmann-Eggebert⁸ geben einen den eigenen

Befunden sehr nahe kommenden Maximalwert von 1,4 MeV an und weisen bereits auf eine komplexe Struktur der γ -Strahlen hin. Allerdings konnte man diese Feststellung bei der von den Autoren gewählten einfachen Absorptionsanordnung nicht als sehr gesichert ansehen.

Die γ - γ -Koinzidenzmessungen haben gezeigt, daß der auf 1000 γ -Quanten bezogene γ - γ -Koinzidenzwert $\sim 1,3$ Koinzidenzen pro Min. beträgt. Dies bedeutet aber nicht, daß der in Kaskade umgewandelte Quantenanteil sehr gering ist. Man muß sich stets vor Augen halten, daß in die Wahrscheinlichkeit der γ - γ -Koinzidenz die Empfindlichkeit des verwendeten 100 μ -Aluminium-Zählrohrs für γ -Strahlen (etwa 10^{-2}) quadratisch eingeht. Die β - γ -Koinzidenzmessungen haben eindeutig gezeigt, daß die 1,5-MeV- β -Strahlung mit γ -Strahlung gekoppelt ist. Experimentell konnte trotz der verfeinerten Absorptionsmethode keine schwache, härtere β -Komponente gefunden werden. Auf Grund der einwandfreien β -Absorptionskurve müssen wir annehmen, daß eine härtere β -Komponente, die in den Grundzustand des Cers führen könnte, mindestens 200-mal seltener sein muß als die 1,5-MeV-Komponente. Weiterhin kann aus dem Sargent-Diagramm⁹ abgelesen werden, daß der β -Übergang mit einer Spinänderung, $i = 1$ oder 2, vor sich gehen muß, da das 44-Stdn.-Lanthan zwischen der zweiten und dritten Sargent-Kurve zu liegen kommt. Der hohe γ -Energiewert macht eine Spinänderung von < 5 zwischen dem Anregungszustand des Cers und seinem Grundzustand wahrscheinlich. Genaue Angaben über die Spinwerte der einzelnen Zustände können aus dem bisherigen Resultat noch nicht hergeleitet werden.

II. Das Element 93

Bei der Bestrahlung mit langsamen Neutronen findet neben dem Spaltprozeß auch noch reine Neutronenanlagerung statt. Der Spaltprozeß wird mit sehr großem Wirkungsquerschnitt von langsamen Neutronen am ²³⁵Uran ausgelöst, während der Anlagerungsprozeß durch einen Resonanzvorgang relativ langsamer Neutronen am ²³⁸Uran vor sich geht. Mit sehr schnellen Neutronen hat man allerdings auch beim ²³⁸Uran Spaltprodukte nachgewiesen. Durch die Neutronenanlagerung entsteht

⁷ Nature [London] **136**, 102 [1935].

⁸ Naturwiss. **31**, Heft 16/18 [1943].

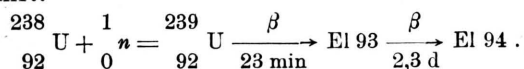
⁹ B. W. Sargent, Proc. Roy. Soc. London [A] **139**, 659 [1933].

⁴ J. Riedhammer, Naturwiss. **32**, 70 [1944].

⁵ Naturwiss. **27**, 11 [1939].

⁶ Naturwiss. **30**, 108 [1942].

ein aktives ^{239}U mit einer Halbwertszeit von 23 Min., das durch β -Zerfall zu einem β -aktiven Element 93 mit einer Halbwertszeit von 2,3 Tagen führt:



Da das Element 93 eines der bisher sichergestellten Transurane ist, ist seine genauere Untersuchung von besonderem Interesse.

A. Herstellung des Elements 93

Für die ersten Versuche standen uns Präparate von Element 93 zur Verfügung, die uns Hr. Götte nach seinem Verfahren¹⁰ freundlicherweise hergestellt hatte. Die letzten Untersuchungen des Elektronen-Linienspektrums (Abschnitt B, b) wurden in Gemeinschaft mit M. Wiedemann mit einem stärkeren Präparat durchgeführt. Dieses wurde ebenfalls nach der Methode von Götte dargestellt. Nach Abtrennung des Urans vom Element 93 durch Ausschütteln einer wäßr. Lösung der Mischkristalle von Natriumuranylacetat und Element 93 mit einer Lösung von Benzoylacetone in Essigester, wobei das Uran in das organische Lösungsmittel und das Element 93 in die wäßr. Lösung geht, wird die wäßr. Lösung auf einem Porzellanschälchen eingedampft, mit konz. Salpetersäure zur Entfernung organischer Reste abgeraucht und der Rückstand in wenig Wasser gelöst. Für die Untersuchung im magnetischen β -Spektrographen wurde diese Lösung nach Zusatz von Natriumacetat elektrolysiert und das Element 93 auf einen 0,3 mm starken Platindraht abgeschieden (Ausb. 50%).

B. Durchführung der Messungen

a) *Halbwertszeitbestimmung, Absorptions- und Koinzidenzmessungen.* Wie beim Lanthan wurde zunächst die Halbwertszeit in Abhängigkeit von verschiedenen, zwischen β -Zählrohr und Präparat geschalteten Aluminiumabsorbern bestimmt. Es ergeben sich wiederum parallele Abfallskurven, aus denen im Mittel eine Halbwertszeit von $2,31 \pm 0,11$ Tagen folgt. Bei der geringen Energie der β -Strahlen sind bei den beiden stärksten Absorbern nur noch die γ -Strahlen zur Messung gelangt. Die gleichzeitig gemessenen $\gamma\gamma$ -Koinzidenzen fallen ebenfalls mit der Halbwertszeit des Elements 93 ab. Die γ -Strahlen werden demnach sämt-

¹⁰ H. Götte, ds. Z. 1, 377 [1946].

lich als Folge der Umwandlung des Elements 93, also vom Element 94, ausgesandt.

Nach der Absorptionsmethode mittels Koinzidenzen wurde die obere Grenze des β -Spektrums zu 480 KV (0,490 g Al/cm²) ermittelt. Auch beim Element 93 konnten $\beta\gamma$ -Koinzidenzen bis zur oberen Grenze des β -Spektrums nachgewiesen werden, so daß auf eine Kopplung der γ -Strahlung mit der β -Strahlung geschlossen werden muß.

Die γ -Energie wurde wie beim Lanthan durch Messung der Compton-Elektronen bestimmt. Die maximale Reichweite der Compton-Elektronen beträgt 0,089 g Al/cm². Hieraus folgt eine γ -Energie von etwa 0,5 MeV.

b) *Das Elektronen-Linienspektrum des Elements 93.* Zur Untersuchung des β -Spektrums im magnetischen β -Spektrographen standen nur sehr schwache Präparate zur Verfügung, so daß wir eine genauere Aufnahme des β -Spektrums mit einem Zählrohr noch nicht vornehmen konnten. Wir benutzten vielmehr die photographische Methode und beschränkten uns zunächst auf die Suche nach Elektronenlinien, die sich erfahrungsgemäß viel leichter mit der photographischen Platte als mit dem Zählrohr nachweisen lassen. Über diese Versuche ist bereits berichtet worden¹¹. Das Ergebnis ist noch einmal in der nachstehenden Ta-

Nr. der Linien	$H \cdot \rho$	Energie in KeV	Intensität	Ursprung		K_{α} — bzw. γ — Energie	
				Linie	Schale	in KeV	Abweichung vom Mittelwert
1	2	3	4	5	6	7	8
1	970	74,6	mittelschwach	K_{α}	L_I	97,3	−0,5%
2	1050	86,2	mittel	γ_1	K	206,2	−0,9%
3	1090	92,4	schwach	K_{α}	M_I	98,3	+0,5%
4	1164	105	stark	γ_2	K	225	−0,4%
5	1445	153	stark	γ_3	K	273	−1,1%
6	1615	186,9	mittelschwach	γ_1	L_I	209,6	+0,8%
7	1696	203,5	mittel	γ_1	M_I	209,4	+0,7%
				γ_2	L_I	226,2	+0,1%
8	1774	221,6	schwach	γ_2	M_I	227,5	+0,7%
9	1936	254,4	mittel	γ_3	L_I	277,1	+0,5%
10	2010	271	schwach	γ_3	M_I	276,9	+0,4%

Elektronen-Linienspektrum des Elements 93.

¹¹ K. Philipp und J. Riedhammer, Naturwiss. 32, 216 [1944]; K. Philipp, J. Riedhammer u. M. Wiedemann, Naturwiss. 32, 229 [1944].

belle zusammengestellt. Außerdem wurde noch eine schwache Linie bei $H \cdot \varphi = 1860$, entsprechend 238 KV, und vier schwache Linien im weichen Gebiet ($H \cdot \varphi = 650-900$) gefunden, die noch nicht gedeutet werden konnten. Unter Benutzung der für die K-, L- und M-Schale des Elements 94 extrapolierten Ablösearbeiten von 120 KV, 22,7 KV und 5,87 KV ergeben sich für die K_{α} -Linie 97,8 KV und für die drei γ -Linien

$$\begin{aligned}\gamma_1 &= 208 \text{ KV}, \\ \gamma_2 &= 226 \text{ KV}, \\ \gamma_3 &= 276 \text{ KV}.\end{aligned}$$

C. Diskussion der Ergebnisse

Beim Element 93 haben bereits E. McMillan und P. H. Abelson¹² auf eine komplexe γ -Struktur hingewiesen. Unsere Messungen der γ - γ -Koinzidenzen bestätigen diesen Befund. Weiter kann nach unseren Ergebnissen ausgesagt werden, daß eine Kopplung zwischen dem 480-KV- β -Spektrum und der γ -Strahlung vorliegt und eine härtere β -Komponente einige hundertmal intensitätsärmer sein muß. Aus dem Elektronen-Linienspektrum ergaben sich drei γ -Linien mit der Energie von 208, 226 und 276 KV. In die Tabellen von Mattauch und Flügge sind auf Grund einer mündlichen Mitteilung von Seaborg zwei γ -Energien von 220 und 270 KV aufgenommen worden. Diese mit

unseren Experimenten gut vereinbaren Werte sind vermutlich ebenfalls aus Elektronenlinien erschlossen. Die von uns aufgefundenen drei γ -Energien scheinen einer sehr starken inneren Umwandlung zu unterliegen. Hierfür spricht die mit der Intensität der starken F-Linie des Thoriums B ($H \cdot \varphi = 1385$) vergleichbare Intensität der drei K-Linien, wenn man grob Aufnahmen des Elektronen-Linienspektrums von Th B und Element 93 vom gleichen Produkt Aktivität mal Belichtungszeit vergleicht. Ein genauer Vergleich konnte leider aus äußeren Gründen nicht mehr durchgeführt werden. Ebenso steht die relativ schwache Intensität der gemessenen γ -Strahlung damit in Einklang. Im Sargent-Diagramm liegt das 2,3-Tage-Element 93 sehr nahe der ersten Sargent-Kurve, was besagt, daß der β -Übergang ohne Spinänderung vor sich geht. Natürlich ist auch hier die Frage der richtigen Spinzuzuordnung eine weniger erfreuliche Angelegenheit, da eine Überlappung niederer Teilspektren ohne weiteres möglich sein kann und dem Experiment nicht mehr zugänglich zu sein braucht.

Die Messungen zur vorliegenden Arbeit sind im Kaiser-Wilhelm-Institut für Chemie in Berlin-Dahlem ausgeführt worden. Wir möchten Hrn. Dr. Götte und Hrn. Dr. Seelmann-Eggebert für die Herstellung zahlreicher Lanthan- und Element-93-Präparate und Hrn. Dr. Ramm vom Max-Planck-Institut für die Durchführung der Bestrahlungen unseren besten Dank aussprechen.

¹² Physic. Rev. **57**, 1185 [1940].